



# Matériau composite de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt : influence de la structuration 3D sur le comportement spectral de l'effet Faraday

Elie Abou Diwan

## ► To cite this version:

Elie Abou Diwan. Matériau composite de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt : influence de la structuration 3D sur le comportement spectral de l'effet Faraday. Optique / photonique. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, 2014. Français. NNT : 2014STET4015 . tel-01187183

**HAL Id: tel-01187183**

**<https://theses.hal.science/tel-01187183>**

Submitted on 26 Aug 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**UNIVERSITE JEAN MONNET SAINT-ETIENNE**

**THESE**

Présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

Ecole doctorale « Sciences, Ingénierie, Santé »

Spécialité « Optique, Photonique, Hyperfréquence »

Préparée au Laboratoire Télécom Claude Chappe

Par

**Elie ABOU DIWAN**

---

**Matériau composite de silice dopée par des  
nanoparticules magnétiques de ferrite de  
cobalt : influence de la structuration 3D sur  
le comportement spectral de l'effet Faraday**

---

Soutenue le 24 octobre 2014, devant le jury composé de :

M. Niels KELLER

Rapporteur

Mme Navy YAM

Rapporteuse

M. Olivier SOPPERA

Président du jury

M. Jean Jacques ROUSSEAU

Directeur de thèse

M. François ROYER

Co-encadrant

M. Damien JAMON

Co-encadrant



The end of everything...

The beginning, the beginning of everything...





Une thèse est un vrai travail collaboratif. De ce fait, je souhaite adresser mes remerciements les plus sincères à toute personne qui m'a apporté son aide et qui a contribué de façon ou d'une autre à la réalisation de ces travaux ainsi qu'à la réussite et le bon déroulement de cette inoubliable expérience.

Je souhaite tout d'abord remercier Monsieur Olivier Soppera, Directeur de recherche CNRS, d'avoir présidé ce jury, Monsieur Niels Keller, Directeur de recherche CNRS, et Madame Navy Yam, Maître de conférences habilitée à diriger des recherches, pour avoir accepté la responsabilité d'être rapporteurs de ce travail.

J'adresse tout particulièrement mes profonds remerciements à mon encadrant et ex-enseignant Monsieur François Royer, Maître de conférences habilité à diriger des recherches, pour m'avoir confié et dirigé ce travail. Son énergie et sa confiance ont été des éléments moteurs pour moi. J'ai pris un grand plaisir à travailler avec lui. J'ai eu la chance de connaître M. Royer comme enseignant au cours de ma formation d'ingénieur à Télécom Saint-Etienne, école d'ingénieurs télécoms associée à l'Institut Mines-Télécom. Cela m'a permis d'apprécier en premier lieu ses capacités et connaissances théoriques et pratiques ainsi que ses qualités de communication, de dynamisme et son ouverture d'esprit. De plus, j'ai admiré sa méthode de travail perfectionnée ainsi que sa gestion du temps. Au cours de ces années, son attention de tout instant sur mes travaux, son aide, ses précieux conseils et son écoute ont été prépondérants pour la bonne réussite de ces travaux de thèse.

J'adresse de chaleureux remerciements à mon co-encadrant Monsieur Damien Jamon, Ingénieur de recherche et de formation, pour sa disponibilité en tout moment, son aide précieuse dans les différentes caractérisations et mesure, ses informations et connaissances, ses conseils et surtout ses diverses idées innovatrices qui ont joué un rôle prépondérant dans le bon déroulement de ces travaux de thèse. J'ai beaucoup appris à ses côtés et je lui adresse ma gratitude pour tout cela.

Je tiens aussi à remercier mon directeur de thèse Monsieur Jean Jacques Rousseau, Professeur et directeur du laboratoire Télécom Claude Chappe (LT2C), pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire, sa franchise, sa sympathie ainsi que tout moment passé au cours de ces années à me signer le tas des documents administratifs.

Mes remerciements vont aussi à Madame Marie Françoise Blanc-Mignon, Maître de conférences, pour son sourire, sa sympathie et sa contribution appréciée à ce travail en réalisant les différentes images au microscope électronique à balayage (MEB).

Je remercie aussi Madame Sophie Neveu, Maître de conférences, pour les ferrofluides d'excellente qualité mis au point spécialement pour l'élaboration des couches magnéto-optiques au sein de notre laboratoire.

J'adresse des sincères remerciements aux différents membres de l'équipe pédagogique de Télécom Saint-Etienne pour m'avoir accueilli au sein de leur établissement. Tout d'abord, en tant qu'étudiant ingénieur, ensuite en tant que moniteur et finalement en tant qu'attaché temporaire d'enseignement et de recherche.

Mes remerciements vont également à tous mes collègues au sein du laboratoire LT2C surtout aux actuels et anciens membres de l'équipe magnéto-optique ainsi qu'aux deux autres membres du trio Libanais, Nicole Doumit et Ardaches Tchangoulian.

Je remercie finalement mes amis qui m'ont tout le temps soutenu et haussé le moral. On a passé des moments inoubliables ensemble qui marqueront à jamais nos mémoires !

<b>INTRODUCTION</b>	<b>11</b>
<b>I. STRUCTURES PERIODIQUES ET MATERIAUX MAGNETO-OPTIQUES</b>	<b>15</b>
<b>I.1. Cristaux photoniques</b>	<b>15</b>
I.1.1. Etat de l'art	17
I.1.1.1. Un peu d'histoire	18
I.1.1.2. Opales directes	18
I.1.1.3. Opales inverses	21
I.1.2. Quelques applications des cristaux photoniques	23
<b>I.2. Effet Faraday</b>	<b>26</b>
I.2.1. Propagation dans un matériau aimanté	26
I.2.2. Rotation Faraday	27
<b>I.3. Cristaux magnéto-photoniques</b>	<b>30</b>
I.3.1. Etat de l'art	30
I.3.1.1. Cristaux magnéto-photoniques 1D	30
I.3.1.2. Cristaux magnéto-photoniques 2D	32
I.3.1.3. Cristaux magnéto-photoniques 3D	34
I.3.2. Quelques applications des cristaux magnéto-photoniques	41
<b>I.4. Objectifs de la thèse</b>	<b>44</b>
I.4.1. Matériaux utilisés dans l'intégration des composants à effet non-réciproque	44
I.4.2. Matériau magnéto-optique composite	45
I.4.3. Structuration 3D du matériau magnéto-optique composite	48
<b>I.5. Conclusion</b>	<b>51</b>
<b>II. STRUCTURES PERIODIQUES : ETUDE COMPORTEMENTALE ET MAGNETO-OPTIQUE</b>	<b>53</b>
<b>II.1. Structure cubique à faces centrées</b>	<b>53</b>
II.1.1. Structure cristalline	53
II.1.2. Définition de la structure cubique à faces centrées	54
<b>II.2. Relation de dispersion d'un cristal photonique 3D</b>	<b>58</b>
II.2.1. Propagation de la lumière dans les cristaux photoniques : Equation de Helmholtz	58
II.2.2. Modes de Bloch	59
II.2.3. Relation de dispersion d'un cristal photonique 3D	59
<b>II.3. Relation de dispersion d'un cristal photonique ou magnéto-photonique 1D</b>	<b>62</b>
II.3.1. Approche matricielle	62
II.3.1.1. Présentation et propriétés générales	62

II.3.1.2. Matrice M de la cellule unitaire -----	64
II.3.2. Relation de dispersion d'un cristal photonique 1D -----	65
II.3.2.1. Répartition du champ électrique-----	67
II.3.3. Relation de dispersion d'un cristal magnéto-photonique 1D -----	71
<b>II.4. Simulation en 1D pour la détermination du facteur de mérite-----</b>	<b>73</b>
II.4.1. Approche théorique : calcul de la matrice de transfert -----	73
II.4.2. Simulation des structures périodiques 1D-----	76
II.4.2.1. Structure périodique 1D : magnéto-optique/air -----	78
II.4.2.2. Structure périodique 1D : magnéto-optique/air avec défaut -----	80
II.4.2.3. Structure périodique 1D : défaut magnéto-optique en forme de microcavité ----	82
II.4.2.4. Comparaison des résultats de simulation du facteur de mérite-----	84
<b>II.5. Conclusion -----</b>	<b>86</b>
 <b>III. ELABORATION ET CARACTERISATION DES CRISTAUX MAGNETO-PHOTONIQUES 3D -----</b>	 <b>87</b>
<b>III.1. Revue des méthodes de fabrication des cristaux photoniques 3D -----</b>	<b>87</b>
III.1.1. Lithographie -----	88
III.1.2. Auto-arrangement-----	89
III.1.2.1. Sédimentation -----	90
III.1.2.2. Centrifugation -----	91
III.1.2.3. Dépôt vertical -----	91
III.1.3. Polymérisation à deux photons -----	93
III.1.4. Holographie-----	94
<b>III.2. Elaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D -----</b>	<b>96</b>
III.2.1. Matériau utilisé pour la réalisation de l'opale directe -----	96
III.2.2. Voie sol-gel-----	96
III.2.2.1. Définition et mécanisme -----	96
III.2.2.2. Préparation de la solution sol-gel-----	97
III.2.3. Nanoparticules magnétiques -----	98
III.2.3.1. Définition et présentation-----	98
III.2.3.2. Ferrofluides utilisés-----	99
III.2.4. Procédure d'élaboration-----	100
III.2.4.1. Hydrophilisation du substrat de verre-----	102
III.2.4.2. Elaboration de l'opale directe-----	102
III.2.4.3. Infiltration de l'opale directe par une matrice sol-gel -----	102
III.2.4.4. Traitement thermique de la structure réalisée -----	104
III.2.4.5. Dissolution des microbilles de polystyrène -----	104
III.2.5. Voie alternative à l'élaboration des cristaux photoniques -----	104
<b>III.3. Caractérisation optique et magnéto-optique-----</b>	<b>108</b>
III.3.1. Mesure de la transmittance -----	108

III.3.2. Description des bancs optiques de mesure -----	110
III.3.2.1. Banc Polariseur-Echantillon-Analyseur (PEA) -----	111
III.3.2.2. Banc Polariseur-Echantillon-Modulateur-Analyseur (PEMA)-----	114
III.3.2.3. Comparaison des deux bancs PEA et PEMA -----	120
<b>III.4. Conclusion-----</b>	<b>120</b>
 <b>IV. CRISTAUX MAGNETO-PHOTONIQUES 3D : RESULTATS EXPERIMENTAUX-----</b>	 <b>123</b>
<b>IV.1. Constitution et propriétés optiques des opales-----</b>	<b>123</b>
IV.1.1. Opales inverses -----	124
IV.1.1.1. Constitution physique-----	124
IV.1.1.2. Bande interdite photonique-----	125
IV.1.2. Opales inverses dopées -----	127
IV.1.2.1. Constitution physique-----	127
IV.1.2.2. Bande interdite photonique-----	128
IV.1.3. Comparaison entre une opale inverse non dopée et une dopée -----	131
<b>IV.2. Propriétés magnéto-optiques des opales inverses dopées-----</b>	<b>133</b>
IV.2.1. Caractère magnéto-optique du matériau composite -----	133
IV.2.2. Caractère magnéto-optique des opales inverses dopées-----	135
IV.2.3. Modifications spectrales de l'effet magnéto-optique-----	138
IV.2.3.1. Rotation Faraday-----	138
IV.2.3.2. Ellipticité Faraday -----	142
IV.2.4. Améliorations apportées à la caractérisation magnéto-optique -----	147
IV.2.5. Facteur de mérite -----	149
<b>IV.3. Bilan et perspectives-----</b>	<b>150</b>
<b>IV.4. Conclusion -----</b>	<b>151</b>
 <b>CONCLUSION -----</b>	 <b>153</b>
 <b>ANNEXE : CALIBRATION ELLIPSOMETRIQUE -----</b>	 <b>157</b>
 <b>BIBLIOGRAPHIE-----</b>	 <b>159</b>



---

## Introduction

---

La fabrication de dispositifs non réciproques se fait classiquement par l'emploi de matériaux magnéto-optiques dont le comportement dépend du sens de propagation de la lumière en leur sein. A l'image de l'isolateur optique qui protège les sources lasers ou les amplificateurs des réflexions parasites, de tels dispositifs sont essentiels dans les systèmes de télécommunications optiques. Il s'agit aujourd'hui de composants d'espace libre qui emploient principalement le grenat d'yttrium et de fer (YIG) ou ses versions dérivées [1]. Pour autant, l'intégration de ce type de matériaux se heurte à diverses difficultés d'ordre technologique qui empêchent depuis plus de 30 ans la mise sur le marché d'isolateurs intégrés. L'incompatibilité résulte de la différence entre le coefficient d'expansion thermique du YIG et des substrats verre ou silicium, ainsi que de la forte valeur de température de recuit nécessaire (800°C) à la cristallisation du YIG. Dans le but de surmonter ce problème de compatibilité, plusieurs matériaux innovants sont développés.

Dans ce cadre, le laboratoire Télécom Claude Chappe (LT2C) utilise depuis quelques années un procédé sol-gel basse température pour développer un matériau magnéto-optique composite, constitué de nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt ( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ) encapsulées dans une matrice de silice. Ce matériau est parfaitement compatible avec les technologies d'optique intégrée sur verre [2] et pour une concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt égale à 1%, il présente une valeur de rotation Faraday magnéto-optique de l'ordre de 200°/cm à 1550nm. Mais le facteur de mérite associé, rapport de la rotation Faraday à l'absorption, présente une valeur encore trop faible pour obtenir un comportement optimisé.

De ce fait, l'objectif principal de ce travail consiste à structurer le matériau dans le but d'augmenter ses performances magnéto-optiques et son facteur de mérite. En effet, la structuration périodique entraîne la formation de plages de longueur d'ondes, appelées bandes interdites photoniques (BIP), où les ondes lumineuses ne peuvent pas se propager. De plus, sur les bords de ces bandes, la vitesse des ondes est ralentie, ce qui augmente leur interaction avec le matériau et permet ainsi d'augmenter les effets liés [3].

De nombreux travaux publiés dans la littérature montrent que la structuration périodique 1D peut conduire à l'exaltation de la valeur de rotation Faraday [4-11] et du facteur de mérite [12] en bords et à l'intérieur de la BIP. En outre, d'autres travaux [13-19] montrent que les cristaux magnéto-photoniques 3D peuvent être élaborés à partir d'un processus qui utilise un procédé sol-gel basse température, ce qui est parfaitement compatible avec le matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C. De plus, les travaux qui traitent de la caractérisation magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 3D [20-26] montrent des modifications de l'effet Faraday qu'on observe au niveau de la BIP. Ainsi, en s'appuyant sur le principe de pouvoir exalter la valeur des effets magnéto-optiques et du facteur de mérite, le laboratoire LT2C s'est orienté vers une approche de structuration 3D du matériau



magnéto-optique composite basée sur les opales. Ces dernières sont élaborées à partir de microbilles de polystyrène auto assemblées et imprégnées du matériau magnéto-optique composite.

Dans ce cadre, les travaux de cette thèse sont une continuité de ceux effectués précédemment au laboratoire LT2C sur les cristaux magnéto-photoniques 3D et les composites magnéto-optiques. Une thèse soutenue en 2011, a mis en œuvre la procédure d'élaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D et montrée l'obtention de BIP dans le matériau magnéto-optique. En s'appuyant sur ces résultats, les travaux de cette thèse consistent tout d'abord à optimiser au mieux la procédure d'élaboration afin d'améliorer la qualité structurale et magnéto-optique des opales. Ensuite, ils consistent à réaliser une étude systématique des effets magnéto-optiques dans ces structures 3D pour investiguer le comportement spectral de l'effet Faraday et qualifier les modifications apportées au facteur de mérite. Cette thèse se compose de quatre chapitres.

Le premier chapitre, est consacré à l'état de l'art des cristaux photoniques et magnéto-photoniques. Ainsi, les cristaux photoniques sont tout d'abord présentés en s'appuyant principalement sur les travaux qui utilisent une technique sol-gel basse température pour élaborer des opales. On détaille ensuite l'état de l'art des cristaux magnéto-photoniques en soulignant les travaux qui traitent de l'étude des effets magnéto-optiques dans ce type de structures, notamment les modifications de l'effet Faraday et du facteur de mérite. Dans la dernière partie de ce chapitre, la motivation et les objectifs des travaux de cette thèse sont exposés en détail.

Le deuxième chapitre, traite des propriétés générales des cristaux photoniques et magnéto-photoniques en s'intéressant plus particulièrement à l'influence d'un arrangement périodique sur les propriétés magnéto-optiques de la structure. Ainsi, après avoir présenté la constitution de la structure cubique à faces centrées (CFC), la propagation des ondes et l'impact de la structure sur celle-ci sont étudiés au travers de la relation de dispersion et de la BIP. Cette étude est expliquée pour des cristaux 3D, puis par réduction est menée plus dans le détail sur des cristaux 1D. Enfin, des simulations de structures périodiques 1D sont menées dans le but de vérifier l'effet de la structuration sur l'exaltation de la valeur de l'effet Faraday et du facteur de mérite.

Le troisième chapitre est dédié à l'exposé de la procédure d'élaboration et des techniques de caractérisation optique et magnéto-optique utilisées dans ce travail. Tout d'abord, les méthodes les plus utilisées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D sont rappelées en surlignant celle du dépôt vertical, technique d'auto-arrangement utilisée pour l'élaboration des opales artificielles au cours de ce travail. On détaille ensuite la procédure choisie pour élaborer les cristaux magnéto-photoniques, avec des informations sur le procédé sol-gel et les ferrofluides utilisés. Les caractérisations, optique et magnéto-optique, ayant été menées sur deux bancs optiques différents, il en est fait une présentation exhaustive avec une comparaison de leurs performances.

Les résultats expérimentaux obtenus et leur analyse associée sont le sujet du quatrième et dernier chapitre. Les propriétés structurale et optique des opales inverses sont tout d'abord

exposées au travers d'images MEB, puis de l'étude de la position centrale de la BIP en fonction de la taille des microbilles de polystyrène, du dopage et de la variation de l'angle d'incidence de la lumière sur l'opale. On détaille ensuite les propriétés magnéto-optiques des opales inverses dopées, en soulignant tout d'abord le caractère magnéto-optique des échantillons. Ensuite, le comportement de la rotation et de l'ellipticité Faraday des opales inverses dopées est présenté en fonction de la longueur d'onde et en fonction du champ magnétique appliqué par rapport à une couche magnéto-optique de référence. L'exposé aboutit alors à une étude spectrale du facteur de mérite. Au regard des résultats obtenus, nous sommes alors à même de faire un bilan par rapport aux objectifs initiaux, et de définir des perspectives pour faire suite à ces travaux de thèse.



---

# **I. Structures périodiques et matériaux magnéto-optiques**

---

Ce chapitre traite de l'état de l'art des cristaux photoniques et magnéto-photoniques ainsi que de l'effet magnéto-optique Faraday. Egalement, il présente la motivation et les objectifs des travaux de cette thèse. Ce chapitre est divisé en quatre parties principales et une conclusion.

La première partie présente un état de l'art des cristaux photoniques en soulignant principalement les travaux concernant l'élaboration des opales directes et inverses, notamment par la technique sol-gel. A la fin de cette partie, quelques applications des cristaux photoniques sont présentées.

La deuxième partie traite de l'effet magnéto-optique Faraday. Tout d'abord, l'origine de cet effet est présentée, puis, la rotation Faraday et sa non-réciprocité sont détaillées. De plus, un facteur de qualité, désigné par le facteur de mérite, est introduit. Ce dernier constitue le fil conducteur des travaux de cette thèse.

La troisième partie présente l'état de l'art des cristaux magnéto-photoniques en soulignant principalement les travaux concernant l'étude des effets magnéto-optiques dans ce type de structures, notamment les modifications de l'effet Faraday dans la zone de la bande interdite photonique (BIP). A la fin de cette partie, quelques applications des cristaux magnéto-photoniques sont soulignées.

La dernière partie illustre la motivation et les objectifs principaux des travaux de cette thèse.

## **I.1. Cristaux photoniques**

Un cristal photonique (CP) est un matériau dont l'indice de réfraction est modulé périodiquement à l'échelle de la longueur d'onde d'étude afin de modifier la propagation des ondes électromagnétiques de la même manière qu'un potentiel périodique dans un cristal semiconducteurs affecte le déplacement des électrons en créant des bandes d'énergie autorisées et interdites. L'absence de modes propagatifs sur une plage de fréquences est alors qualifiée de BIP.

Les cristaux photoniques sont des cristaux dont le motif du réseau est composé de matériaux diélectriques ou de matériaux magnétiques ou de la combinaison des deux et cela dans de multiples configurations : unidimensionnelle (1D), bidimensionnelle (2D) ainsi que tridimensionnelle (3D) (figure I.1). Une réflexion partielle des ondes se produit à la frontière entre deux couches d'indices de réfraction différents d'un cristal photonique 1D ou réseau de Bragg. Pour les ondes dont la longueur d'onde est égale à  $4.n.h$  avec  $n$  l'indice de réfraction effectif du milieu et  $h$  l'épaisseur de chaque couche, les réflexions se combinent par

interférences constructives et les couches agissent comme un miroir de grande qualité. La plage de longueurs d'onde réfléchies est nommée BIP.

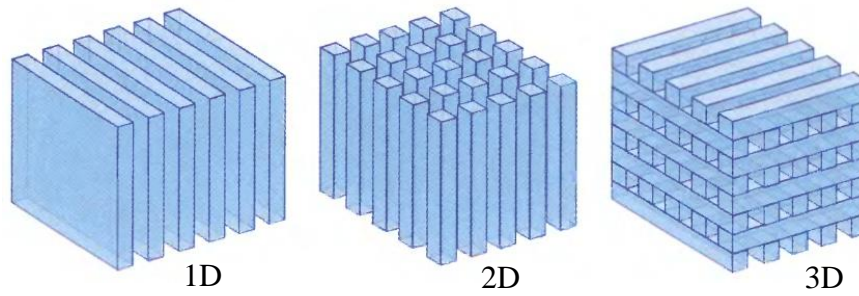


Figure I.1 : Représentation schématique des structures photoniques périodiques 1D, 2D et 3D (Issue de [27]).

La figure I.2 montre des images MEB de réalisations expérimentales des structures photoniques périodiques 1D (figure I.2.a), 2D (figure I.2.b) et 3D (figure I.2.c). La structure de la figure I.2.a est réalisée par Tolmachev *et al* par photolithographie [28]. Cette structure a une période de  $8\ \mu\text{m}$  et une épaisseur de  $28\ \mu\text{m}$ . Le cristal photonique de la figure I.2.b est fabriqué par Magdenko *et al* à l'aide de la gravure ionique réactive associée à un plasma à couplage inductif [29]. Il s'agit d'une couche du matériau magnéto-optique YIG substitué au Bismuth d'épaisseur  $400\ \text{nm}$  présentant des trous périodiques de  $200\ \text{nm}$  de diamètre. L'arrangement périodique de la figure I.2.c est réalisé par Ovsianikov *et al* par polymérisation à deux photons d'une résine photosensible [30]. Cette dernière structure est connue sous le nom de « Yablonovite » ou empilement « tas de bois ».

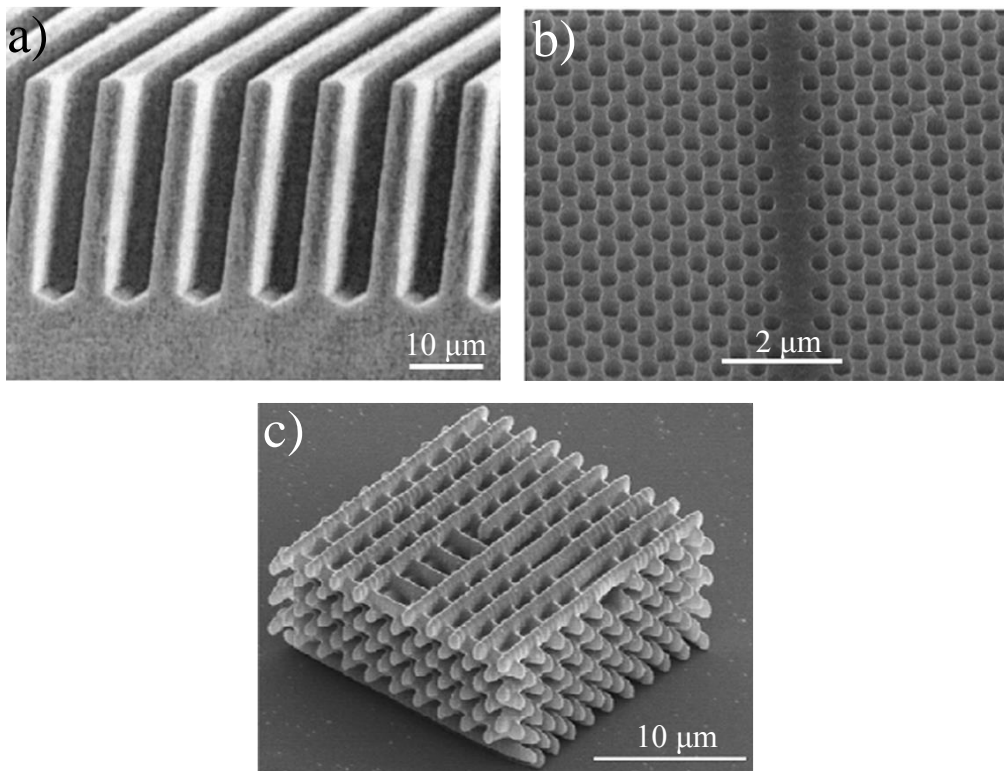


Figure I.2 : Images MEB des structures photoniques périodiques a) 1D [28], b) 2D [29] et c) 3D [30].

La figure I.3 représente un exemple de la transmittance en fonction de la longueur d'onde d'un cristal photonique 3D dit opale inverse. L'intérieur de la figure I.3 montre une image MEB de cette opale inverse.

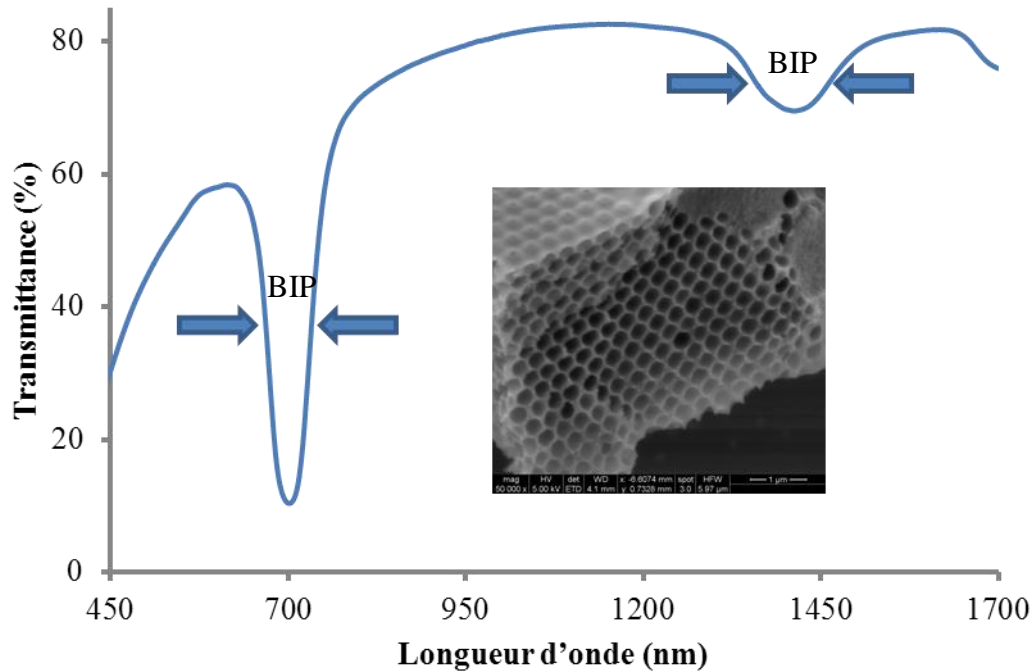


Figure I.3 : Transmission en fonction de la longueur d'onde d'une opale inverse.

On remarque que la courbe de transmittance présente deux bandes interdites photoniques. A l'intérieur de ces dernières, la propagation des ondes électromagnétiques n'est pas totalement possible, la majorité est réfléchi. En outre, en bord de ces dernières, la vitesse de groupe des ondes électromagnétiques est nulle [3]. La vitesse de groupe étant la vitesse à laquelle se propage l'énergie de l'onde électromagnétique, un ralentissement de cette vitesse se traduit par un renforcement de l'interaction entre l'onde et la matière. Il s'agit là d'un intérêt fondamental de la présence des BIP dans les cristaux photoniques qui permettent ainsi d'amplifier l'interaction entre un matériau et une onde électromagnétique.

L'état de l'art de la partie suivante a pour but de présenter l'origine des cristaux photoniques et leur mise en œuvre sous la forme d'opales.

### I.1.1. Etat de l'art

Nous allons détailler ici les différentes approches, utilisées dans la littérature, pour l'élaboration des opales directes et inverses. On réduit l'étude des cristaux photoniques à celle des opales car les méthodes d'auto-arrangement sont établies, présentent un faible coût et permettent d'élaborer des structures périodiques 3D avec une bonne qualité structurale et optique [31]. De plus, parmi toutes les démonstrations qu'on trouve dans la littérature, certains travaux présentent un avantage majeur car ils utilisent un procédé sol-gel basse température pour l'élaboration des cristaux photoniques 3D sous forme d'opale. Ce procédé est également utilisé au laboratoire Télécom Claude Chappe (LT2C) pour la réalisation d'un

matériau magnéto-optique composite parfaitement compatible avec les technologies d'intégration sur verre. Des détails sur ce matériau magnéto-optique composite seront présentés au cours de ce chapitre. De ce fait, l'état de l'art des cristaux photoniques, présenté dans cette partie, sera principalement orienté vers ce type de structures.

#### **I.1.1.1. Un peu d'histoire**

Historiquement, la propagation des ondes électromagnétiques dans un milieu périodique fut étudiée en premier par Lord Rayleigh en 1887 [32]. Ces cristaux 1D possèdent la propriété d'empêcher la propagation de la lumière au travers de l'empilement de plans les constituant, et ce sur une faible bande de longueurs d'ondes. Ce n'est finalement que 100 ans plus tard, en 1987, grâce à Eli Yablonovitch [33] et Sajeev John [34], en joignant les outils de l'électromagnétisme classique et de la physique du solide, que le concept de bande interdite électromagnétique omnidirectionnel a été introduit pour les deuxième et troisième dimensions. Fondamentalement, ces auteurs ont prédits l'existence de la BIP ainsi que la possibilité d'empêcher les effets d'émission spontanée et de localiser la lumière dans les défauts d'un réseau périodique de dimensions appropriées. Dès lors, l'appellation « cristaux photoniques » est apparue ainsi que de nombreux développements dans leurs théorie, fabrication et applications.

Initialement, les chercheurs ont développé des théories et des outils de calcul afin de déterminer les structures susceptibles de présenter une BIP [35, 36]. Peu de temps après, en 1991, Yablonovitch *et al* [37] ont fabriqué le premier cristal photonique 3D possédant une BIP complète et cela en perçant mécaniquement des trous, ayant un diamètre de l'ordre du millimètre, dans un bloc de matériau ayant un indice de réfraction de 3,6. En effet, cette structure, appelée Yablonovite, a empêché la propagation des micro-ondes dans toutes les directions soulignant la présence d'une BIP complète.

Le développement continu de la modélisation théorique et des méthodes de calcul de la BIP des différentes structures périodiques ainsi que les progrès technologiques ont permis aux chercheurs d'expérimenter de nouvelles structures. Cela a abouti à la démonstration de l'existence d'une BIP complète dans la région proche infrarouge et cela en utilisant des méthodes lithographiques [38] ainsi que des cristaux colloïdaux fabriqués par les méthodes d'auto-arrangement [39].

#### **I.1.1.2. Opales directes**

Míguez *et al* [40] ont fabriqué des opales directes de microbilles de silice en utilisant la technique de sédimentation. La figure I.4.a montre une image MEB d'une opale directe où les microbilles de silice sont organisées en une structure CFC. La figure I.4.b présente la mesure de la transmittance en fonction de la longueur d'onde à incidence normale ( $\theta = 0^\circ$ ) où la valeur du diamètre des microbilles de silice ( $D_{sph}$ ) varie entre 220 nm et 535 nm. La figure I.4.c présente la mesure de la transmittance en fonction de la longueur d'onde, en variant la valeur de l'angle d'incidence entre  $0^\circ$  et  $40^\circ$ , d'une opale directe dont la valeur du diamètre des microbilles de silice est égale à 440 nm.

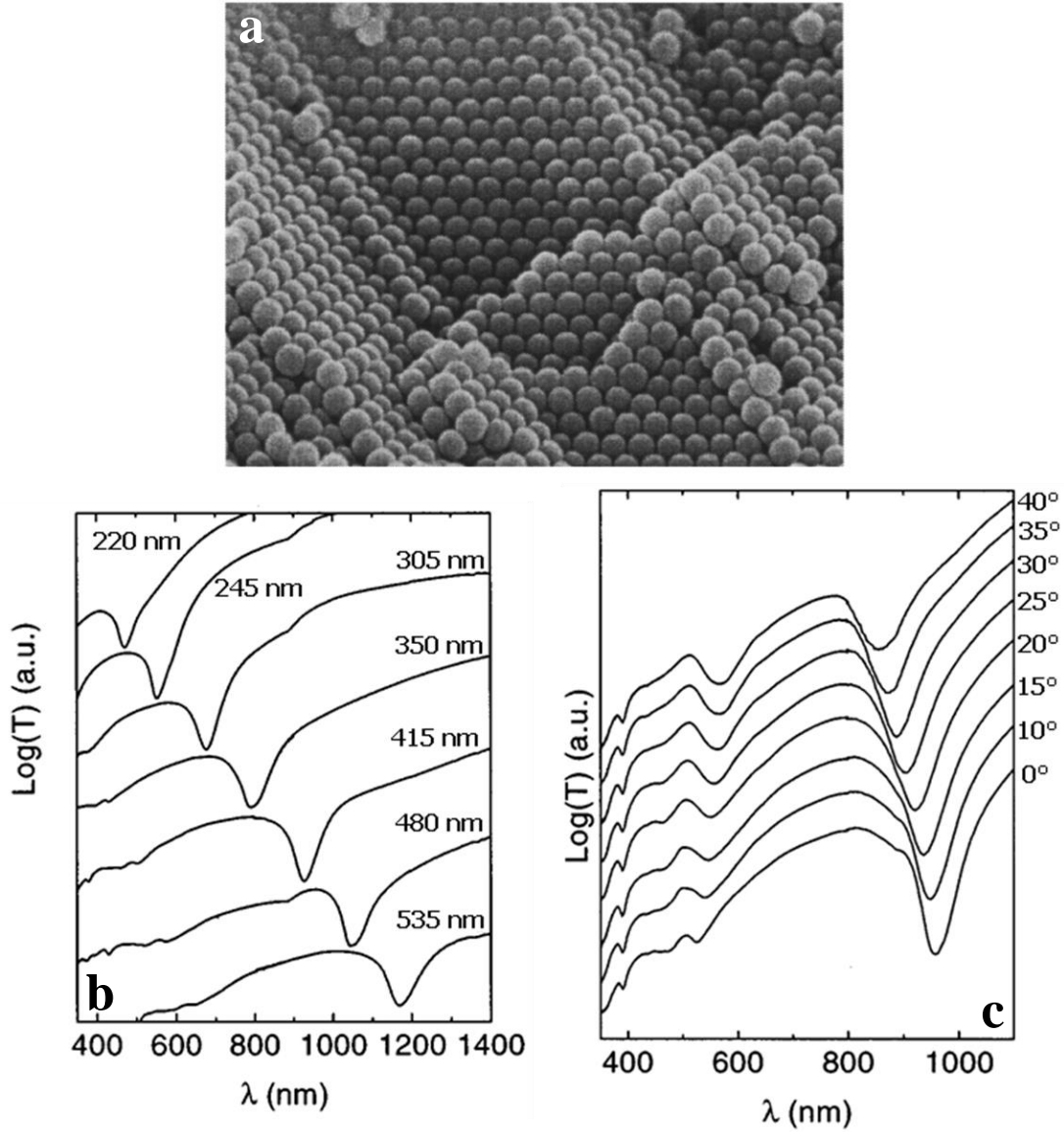


Figure I.4 : a) Image MEB du bord d'une opale directe où les microbilles de silice sont organisées en une structure CFC. Transmittance en fonction de la longueur d'onde : b)  $\theta = 0^\circ$  et  $D_{\text{sph}}$  varie entre 220 nm et 535 nm, c)  $D_{\text{sph}} = 440 \text{ nm}$  et  $\theta$  varie entre  $0^\circ$  et  $40^\circ$  [40].

La figure I.4.b met en évidence la présence d'une BIP et montre qu'en augmentant la valeur du diamètre des microbilles de silice, la position de cette dernière se décale progressivement vers des longueurs d'ondes supérieures. De ce fait, le spectre visible ainsi que le spectre proche infrarouge est couvert. La figure I.4.c montre tout d'abord la présence de deux bandes interdites photoniques. En effet, chaque BIP correspond à une distance interplanare  $d_i$  différente. La figure I.4.c montre ensuite qu'en augmentant la valeur de l'angle d'incidence, la position de la BIP se décale progressivement vers les valeurs inférieures des longueurs d'ondes. L'ensemble de ces résultats est en conformité avec la loi de Bragg définie par :

$$\lambda_c = 2 \cdot d_i \sqrt{n_{\text{eff}}^2 - \sin^2 \theta} \quad \text{Equation I. 1}$$



Avec  $\lambda_c$  la position centrale de la BIP,  $\theta$  l'angle d'incidence,  $n_{\text{eff}}$  l'indice de réfraction effectif égal à :

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{f_m \cdot n_m^2 + (1 - f_m) \cdot n_{\text{air}}^2} \quad \text{Equation I. 2}$$

Où  $f_m$  la fraction volumique occupée par la matrice solide, égale à 0,74 [40] pour un assemblage compact,  $n_m$  et  $n_{\text{air}}$  respectivement l'indice de réfraction de la matrice solide et celui de l'air.

Et  $d_i$  dans le cas des plans (111) d'une structure CFC, égale à [18] :

$$d_{111} = \sqrt{\frac{2}{3}} D_{\text{sph}} \quad \text{Equation I. 3}$$

Ce qui donne :

$$\lambda_c = 2 \cdot D_{\text{sph}} \cdot \sqrt{\frac{2}{3}} \cdot \sqrt{[f_m \cdot n_m^2 + (1 - f_m) \cdot n_{\text{air}}^2] - \sin^2 \theta} \quad \text{Equation I. 4}$$

Cette équation surligne que la position centrale de la BIP  $\lambda_c$  est proportionnelle au diamètre des microbilles  $D_{\text{sph}}$ , comme le montre la figure I.4.b, et varie en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ , comme le montre la figure I.4.c.

Dans la suite, on aborde la qualité structurale de l'opale directe en s'intéressant principalement à l'effet du taux d'évaporation de l'eau sur le processus d'auto-arrangement des microbilles.

Ye *et al* [41] ont mis en évidence l'influence du taux d'évaporation de l'eau sur la qualité structurale des opales directes. Ces dernières sont élaborées par l'auto-arrangement des microbilles de polystyrène sur un substrat de verre et cela en utilisant la technique du dépôt vertical. Les résultats montrent que la meilleure qualité structurale est obtenue en utilisant une température supérieure à la température ambiante et inférieure à 55°C. En outre, une température supérieure à 55°C augmente nettement le taux d'évaporation du solvant. Ceci accélère la croissance cristalline et multiplie les désordres et défauts structuraux.

Galisteo-López *et al* [42] ont élaboré des opales directes de microbilles de polystyrène sur un substrat de verre ou de silicium en utilisant la technique du dépôt vertical à une température de 45°. La structure 3D est caractérisée en utilisant un faisceau laser monochromatique à incidence normale. Le résultat montre un spectre de diffraction de forme hexagonal, caractéristique d'une structure CFC.

Les opales directes présentées dans ce paragraphe constituent la structure de base pour la fabrication des opales inverses.

### I.1.1.3. Opales inverses

Une opale inverse est définie comme étant un arrangement périodique 3D formé par des trous sphériques d'air interconnectés par une matrice solide. En général, la fabrication d'une telle structure débute par l'élaboration d'une opale directe qui joue le rôle d'un masque. Les pores de cette structure de base sont ensuite infiltrés par le matériau désiré. Après traitement adéquat, la structure de base est éliminée, par calcination ou dissolution chimique.

Plusieurs auteurs ont fabriqué et caractérisé structurellement des opales inverses à base de différents matériaux. Cao *et al* ont utilisé le  $\text{TiO}_2$  [13], Jin *et al* le  $\text{TiO}_2$  dopé Ce [15] ainsi que le  $\text{BaTiO}_3$  dopé Ce [14], Abramova *et al* le  $\text{ZnO}$  [16], Nishijima *et al* [17] le  $\text{SiO}_2$ . Dans ces travaux, l'opale directe est élaborée par auto-arrangement des microbilles de polystyrène. La méthode utilisée est la technique du dépôt vertical à une température de l'ordre de  $45^\circ\text{C}$  [13-16] ou la centrifugation [17]. Les pores de l'opale directe sont infiltrés par une solution à base des précurseurs convenables, soit l'orthosilicate de tétraéthyle pour Nishijima *et al*. Cette solution est connue sous l'appellation sol. La gélification du sol conduit à la formation d'une matrice solide autour des microbilles de polystyrènes. Ce procédé basse température est connu sous le nom d'infiltration sol-gel. Après traitement thermique, le polystyrène de l'opale infiltré est éliminée soit par calcination à une température supérieur à  $300^\circ\text{C}$  [13-16] soit en le dissolvant dans l'acétate d'éthyle [17]. La microscopie électronique à balayage (MEB), la microscopie électronique en transmission (MET), la cristallographie aux rayons X ainsi que d'autres techniques de caractérisation structurelle montrent que les opales inverses fabriquées, ayant une structure CFC, sont de bonne qualité sur des largeurs d'ordre micrométrique.

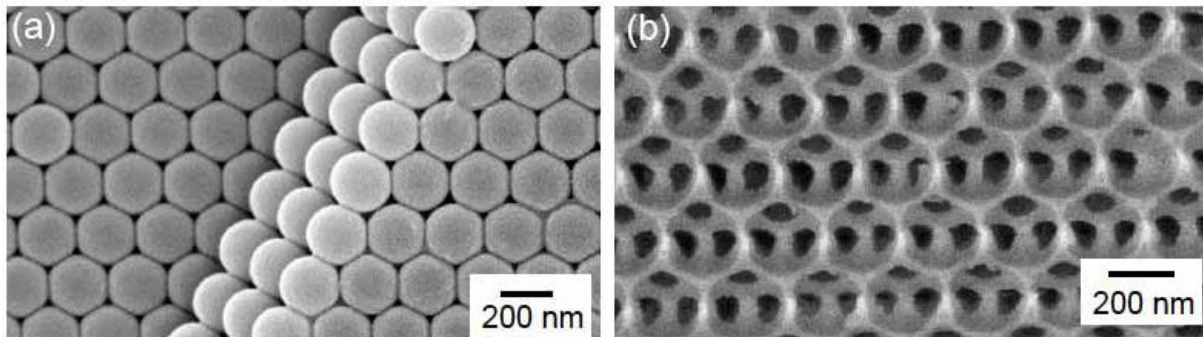


Figure I.5 : Images MEB d'une opale directe (a) et d'une opale inverse (b) fabriquées par Nishijima *et al* [17].

La figure I.5.a présente une image MEB d'une opale directe fabriquée en utilisant la méthode de centrifugation. La figure I.5.b présente une image MEB d'une opale inverse de  $\text{SiO}_2$ . Ces images MEB montrent la bonne qualité structurelle des opales fabriquées sur une largeur d'ordre micrométrique.

On retient de l'ensemble des travaux précédents qu'en utilisant la technique du dépôt vertical ou la centrifugation des opales directes peuvent être élaborées par auto-arrangement des microbilles de polystyrène. De plus, en utilisant un procédé sol-gel basse température, les pores de ces opales directes peuvent être infiltrés par différents matériaux. Ensuite, le polystyrène de la structure de base peut être éliminé soit par calcination soit en le dissolvant

dans un produit chimique comme l'acétate d'éthyle. Au final, les opales inverses obtenues ont une structure CFC et possèdent une bonne qualité structurale sur des largeurs d'ordre micrométrique.

D'autres auteurs comme Waterhouse *et al* [18] ont utilisés des microbilles de polyméthacrylate de méthyle (PMMA) de diamètre entre 280 nm et 415 nm pour élaborer les opales directes. En plus du dépôt vertical et de la centrifugation, la sédimentation gravitationnelle est utilisée comme technique de fabrication des opales directes.

Hatton *et al* [19] ont développé une nouvelle approche pour la fabrication des opales inverses. Le principe de cette méthode consiste à rajouter une quantité d'une solution sol-gel à la suspension colloïdale de microbilles dans l'eau, servant à la fabrication de la structure initiale par la technique du dépôt vertical. Après évaporation du solvant, les microbilles sont entourées par le sol-gel. La structure subit finalement un traitement thermique à une température de l'ordre de 500°C pour 5h afin d'éliminer les microbilles et solidifier le sol-gel.

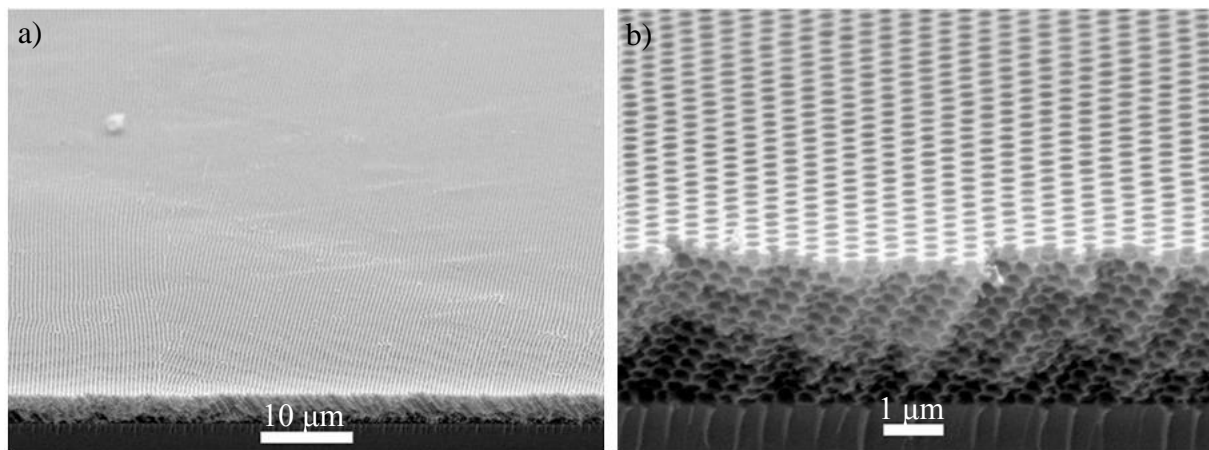


Figure I.6 : Images MEB d'une opale inverse dont la solution initiale contient des microbilles de PMMA dans l'eau ainsi qu'une quantité d'une solution sol-gel [19].

La figure I.6 présente des images MEB d'une opale inverse où la structure initiale est élaborée à partir d'une solution qui contient des microbilles de PMMA dans l'eau ainsi qu'une quantité d'une solution sol-gel. Ces images MEB montrent que cette méthode d'élaboration conduit à la formation d'auto-assemblages homogènes, hautement ordonnés et sans défaut structuraux sur des largeurs considérables d'ordre centimétrique.

On retient de ces travaux que l'ajout d'une quantité de la solution sol-gel au mélange servant à l'élaboration de la structure initiale conduit à l'élaboration des opales inverses homogènes, hautement ordonnées et sans défauts structuraux sur des largeurs d'ordre centimétrique, supérieures de l'ordre de 100 fois aux largeurs obtenues en utilisant les méthodes conventionnelles.

On peut conclure de l'état de l'art présenté dans cette partie que la technique du dépôt vertical permet d'élaborer des opales directes de bonne qualité structurale et optique ayant une structure CFC. Ces structures 3D de base peuvent être fabriquées par l'auto-arrangement des microbilles de polystyrène sur un substrat de verre. De plus, un procédé sol-gel basse

température peut être utilisé pour infiltrer les pores des opales directes par une solution à base des précurseurs comme l'orthosilicate de tétraéthyle. Après un traitement adéquat, les microbilles de polystyrène peuvent être éliminées par l'acétate d'éthyle. Ainsi, des opales inverses sont obtenues. En outre, afin d'améliorer la qualité structurale des opales inverses, une quantité de la solution sol-gel peut être ajoutée au mélange servant à l'élaboration de la structure initiale.

### I.1.2. Quelques applications des cristaux photoniques

Les cristaux photoniques offrent des outils qui permettent de contrôler la propagation des ondes électromagnétiques d'où leur intérêt majeur dans divers domaines. L'ingénierie de la BIP ou des défauts structuraux associés est l'un des axes de conception des cristaux photoniques. Afin de contrôler la propagation de la lumière, une perturbation artificielle est introduite dans le cristal. En effet, il est possible de réaliser des guides d'ondes en introduisant certaines dislocations, ou défauts linéaires, dans les cristaux photoniques. Ces guides d'ondes permettent la transmission de la lumière le long des défauts introduits [43-46].

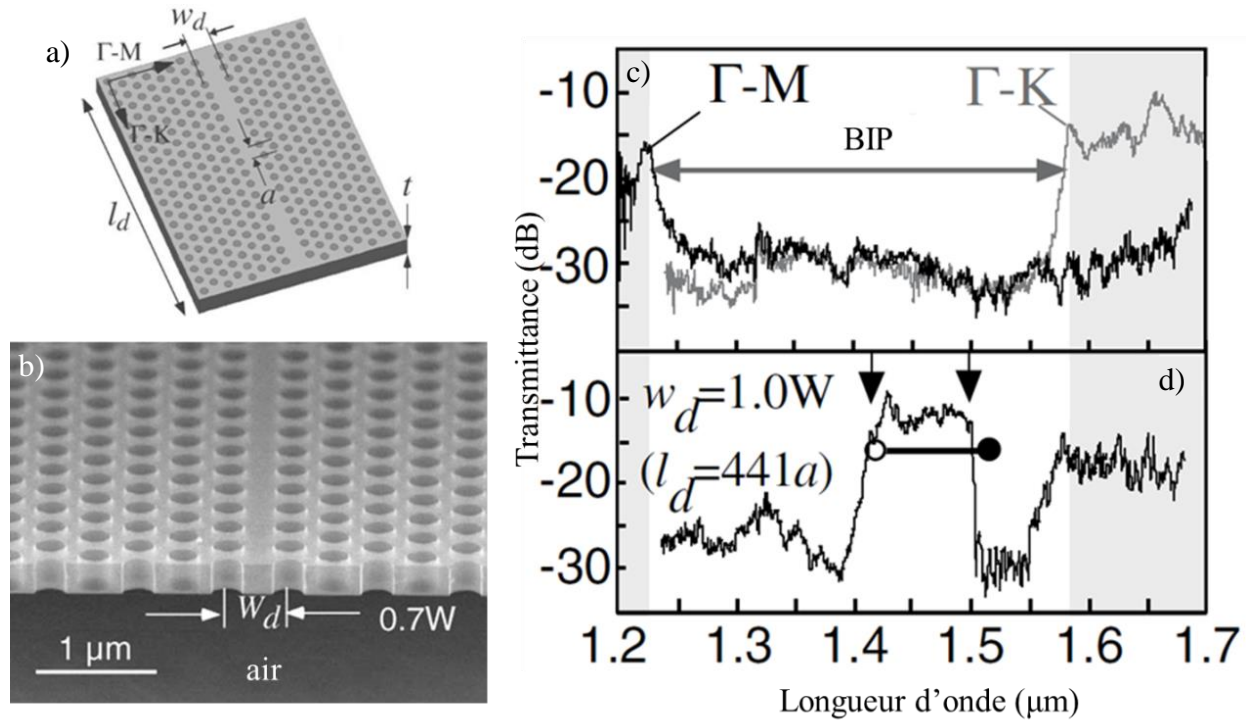


Figure I.7 : Représentation schématique d'un cristal photonique 2D formé de trous cylindriques d'air dans une couche de Si où un défaut linéaire est introduit, b) Image MEB de cette structure 2D. Transmittance (dB) en fonction de la longueur d'onde ( $\mu\text{m}$ ) d'un cristal photonique 2D sans défaut linéaire (c) et ayant un défaut linéaire de longueur  $l_d$  et de largeur  $w_d$  (d) [44].

La figure I.7 résume les travaux réalisés par Notomi *et al* [44]. La figure I.7.d montre visiblement l'effet de l'introduction d'un défaut linéaire dans un cristal photonique 2D (CP 2D). Effectivement, un mode de propagation unique qui présente deux seuils distincts apparaît dans la BIP. Les auteurs ont souligné que la vitesse de propagation à l'intérieur de ces guides d'ondes est deux fois inférieure à celle dans l'air. Ces résultats mettent en évidence que des

guides d'ondes optimisés peuvent être conçus en modifiant les paramètres géométriques de la structure 2D.

En outre, des défauts ponctuels peuvent être introduits dans les cristaux photoniques dans le but de réaliser des nanocavités photoniques où la lumière est piégée [47]. Egalement, la réalisation des circuits photoniques miniatures à différentes fonctions, comme un filtre d'extraction à cristal photonique, est possible en introduisant simultanément des défauts linéaires et des défauts ponctuels [48-50].

Les cristaux photoniques peuvent également être utilisés dans des dispositifs optiques novateurs comme les diodes laser à faible seuil [51], les guides d'ondes à faibles pertes [45, 52-54], les prismes [55] ainsi que les circuits optiques intégrés [38].

Le principe de fonctionnement d'une diode électroluminescente organique (OLED) est basé sur l'électroluminescence. En appliquant une tension électrique appropriée, les électrons et les trous sont injectés dans la couche émettrice à partir de la cathode et de l'anode. Les électrons et les trous se combinent dans la couche émettrice pour former des paires électrons-trous. Lors de cette recombinaison, un photon est émis. Seule une petite fraction du nombre total des photons générés est généralement utilisable ( $\approx 20\%$ ). De ce fait, le but des travaux est d'optimiser le rendement lumineux des OLED. Comme un CP 2D permet d'améliorer le guidage des ondes lumineuses, son insertion dans la structure d'une OLED paraît une solution efficace pour augmenter le rendement lumineux.

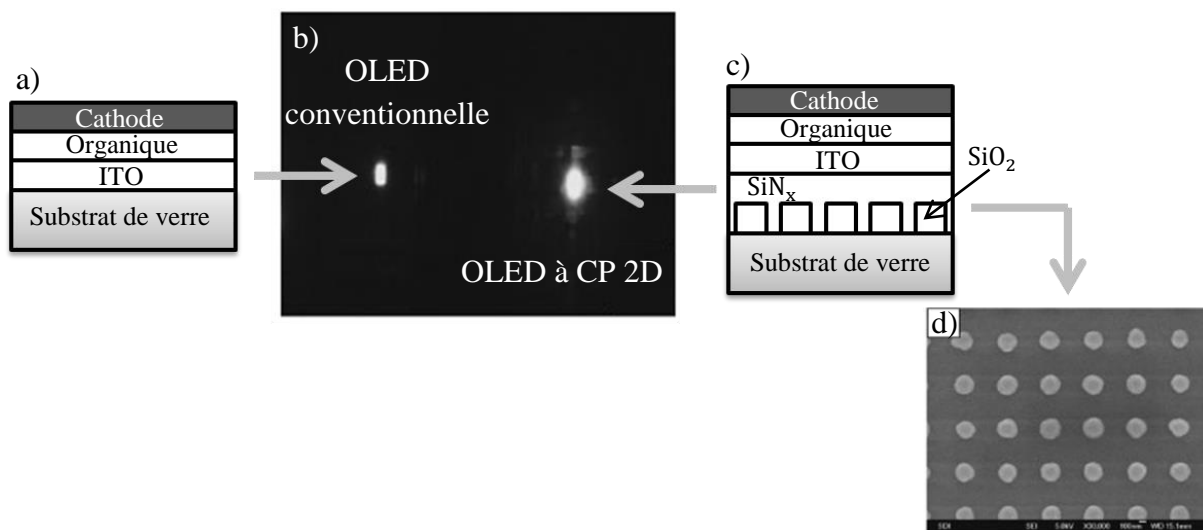


Figure I.8 : a) Représentation schématique de la structure d'une OLED conventionnelle, b) photo comparant le rendement lumineux d'une OLED conventionnelle à celui d'une OLED à CP 2D, c) représentation schématique de la structure d'une OLED à CP 2D, d) Image MEB de la surface d'un CP 2D  $\text{SiO}_2/\text{SiN}_x$  [56].

La figure I.8 résume les travaux réalisés par Do *et al* [56]. Un CP 2D  $\text{SiO}_2/\text{SiN}_x$  est inséré entre le substrat de verre et l'anode d'oxyde d'indium-étain (ITO) de la structure d'une OLED conventionnelle. La figure I.8.b montre que le rendement lumineux d'une OLED à CP 2D est supérieur de 1,5 fois à celui d'une OLED conventionnelle.

Dans le domaine des télécommunications optiques, les matériaux à BIP peuvent améliorer les débits du réseau. En effet, la propagation des longueurs d'ondes de la lumière à des vitesses différentes à travers le matériau est l'inconvénient majeur des fibres optiques classiques. Ce phénomène de dispersion induit un élargissement des impulsions à la sortie des fibres par rapport à l'entrée. Si l'élargissement est trop important, il n'est plus possible de décoder correctement l'information à la sortie et il y a perte d'information suite à des erreurs de transmission. Les fibres à cristal photonique (CP) ou « holey fibers », développées par Philip Russell *et al* [57] peuvent être la solution recherchée pour résoudre ce problème. Ces auteurs ont cherché des solutions pour diminuer la dispersion modale des fibres. La fibre à CP est formée d'un réseau régulier de trous d'air s'étendant le long de sa longueur et qui transmet une gamme de longueurs d'ondes en minimisant la dispersion.

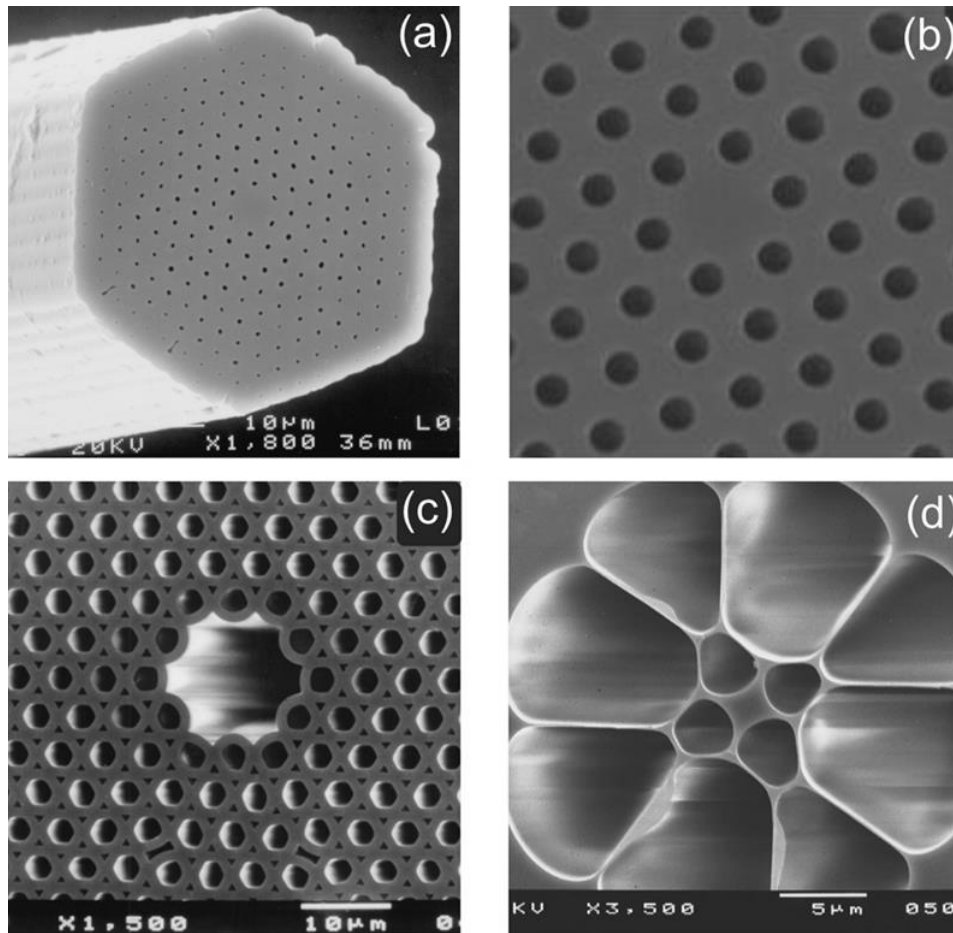


Figure I.9 : Collection d'images MEB de quelques fibres à CP réalisées par Philip Russell *et al* [57].

La figure I.9 représente une collection d'images MEB de quelques fibres à CP réalisées par Philip Russell *et al*. Dans la figure I.9.a, le noyau solide de verre est entouré d'un réseau triangulaire formé de canaux d'air. La figure I.9.b illustre un zoom au niveau du noyau de cette structure. La figure I.9.c montre une fibre à CP à noyau creux tandis que celle de la figure I.9.d est fabriquée à partir du verre SF6 de Schott. Ces travaux soulignent que les fibres à CP peuvent être utilisées pour réaliser des guides d'ondes à faibles pertes où le nombre de modes guidés est déterminé par la géométrie de la fibre. De ce fait, des guides d'ondes

monomodes à grande surface effective de mode peuvent être conçus et fabriqués. Ces structures sont intéressantes pour la fabrication des lasers et amplificateurs de forte puissance.

L'ensemble de ces travaux montre que les cristaux photoniques sont de plus en plus utilisés dans la fabrication des composants, car leur utilisation améliore significativement le comportement attendu.

Au-delà des exemples traités ici, l'introduction d'un matériau magnéto-optique dans une structure de cristal photonique peut modifier les propriétés de ce matériau. Avant de voir comment cela a été mis en œuvre dans la littérature, nous détaillons ici quelques éléments sur les effets magnéto-optiques.

## I.2. Effet Faraday

L'effet Faraday décrit l'interaction entre la lumière et un matériau aimanté. En effet, dans un matériau soumis à un champ magnétique, une onde polarisée rectilignement subit une rotation de polarisation proportionnelle à la composante du champ magnétique parallèle à la direction de propagation de la lumière.

Dans cette partie, nous détaillons l'origine de cet effet, ses spécificités et aboutissons à la définition d'un facteur de qualité, désigné par le facteur de mérite.

### I.2.1. Propagation dans un matériau aimanté

Les propriétés macroscopiques d'un matériau aimanté sont déterminées par le tenseur de permittivité diélectrique  $\epsilon_r(\vec{r})$  reliant le vecteur induction électrique  $\vec{D}(\vec{r}, t)$  au vecteur champ électrique  $\vec{E}(\vec{r}, t)$ . Le tenseur de permittivité diélectrique pour un matériau isotrope soumis à un champ magnétique orienté selon Oz s'écrit :

$$\epsilon_r(\vec{r}) = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & -i\epsilon_{xy} & 0 \\ i\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{xx} \end{pmatrix} \quad \text{Equation I. 5}$$

Ce tenseur diélectrique peut être décomposé en deux parties, les termes diagonaux  $\epsilon_{xx}$  et les termes hors diagonaux  $\epsilon_{xy}$ . Ces derniers sont proportionnels à l'aimantation ou au champ magnétique appliqué,  $\epsilon_{xy} = \text{Cte.} M_z$  avec  $M_z$  l'aimantation selon Oz. De ce fait, les effets magnéto-optiques trouvent leur origine dans les termes hors diagonaux du tenseur  $\epsilon_r(\vec{r})$ .

Considérons une onde électromagnétique plane incidente, de vecteur d'onde  $\vec{k}$ , à une distance  $\vec{r}$  de la source. On a :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = E_0 \exp i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \quad \text{Equation I. 6}$$

$$\vec{H}(\vec{r}, t) = H_0 \exp i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)$$

La résolution des équations de Maxwell en tenant compte du tenseur  $\epsilon_r(\vec{r})$  (équation I.5) conduit à :

$$\begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & -i\epsilon_{xy} & 0 \\ i\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = N^2 \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{Equation I. 7}$$

Avec  $N = n + ik$  indice de réfraction complexe du milieu.

D'où :

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx}E_x - i\epsilon_{xy}E_y &= N^2E_x \\ i\epsilon_{xy}E_x + \epsilon_{xx}E_y &= N^2E_y \\ E_z &= 0 \end{aligned} \quad \text{Equation I. 8}$$

La résolution de ces équations conduit à l'équation suivante :

$$N^4 - 2\epsilon_{xx}N^2 + \epsilon_{xx}^2 - \epsilon_{xy}^2 = 0 \quad \text{Equation I. 9}$$

La solution à cette dernière équation montre que seuls deux types d'onde peuvent se propager sans altération :

- Les vibrations circulaires droites (vcd) caractérisées par un indice de propagation  $N_d = n_d + i\kappa_d = \pm \sqrt{\epsilon_{xx} - \epsilon_{xy}}$  et la relation  $E_{dy} = -iE_{dx}$ .
- Les vibrations circulaires gauches (vcg) caractérisées par un indice de propagation  $N_g = n_g + i\kappa_g = \pm \sqrt{\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}}$  et la relation  $E_{gy} = iE_{gx}$ .

Ces polarisations circulaires droite et gauche constituent les états propres de propagation dans un matériau aimanté dans la direction de propagation. Ils sont à l'origine de l'effet Faraday.

### I.2.2. Rotation Faraday

En 1845 Michael Faraday a découvert un phénomène de rotation de polarisation de la lumière dans un milieu placé dans un champ magnétique externe. La géométrie de cet effet est présentée sur la figure I.10.



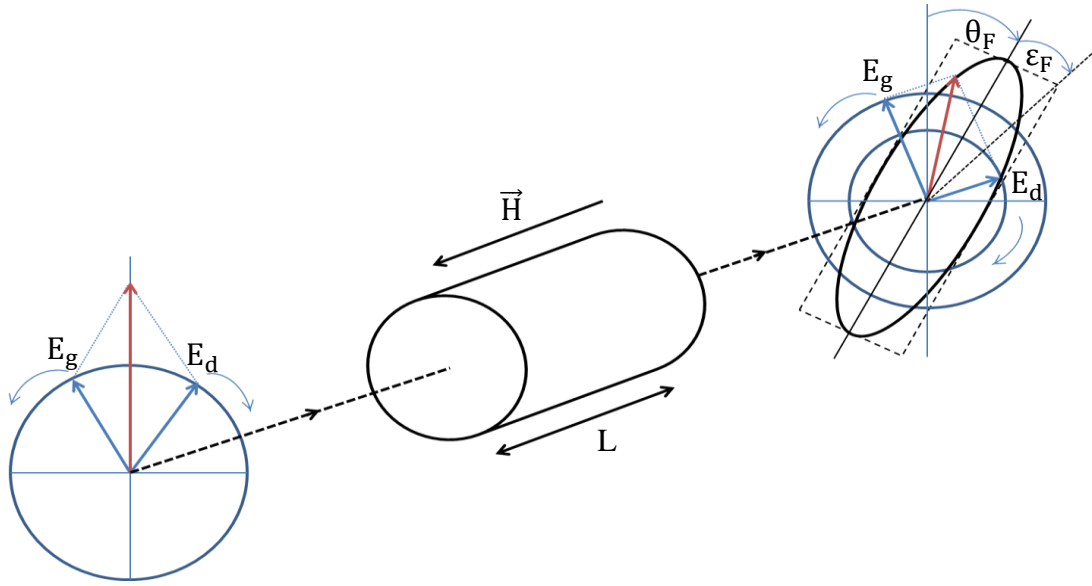


Figure I.10 : Géométrie de l'effet Faraday.

Considérons une onde électromagnétique initialement polarisée rectilignement qui se propagent suivant la direction Oz à travers un matériau d'épaisseur  $L$  soumis à un champ magnétique parallèle à sa direction de propagation ( $\vec{H} = H\vec{u}_z$ ). A l'entrée dans le matériau, la polarisation rectiligne se répartie sur les deux états propres de polarisation circulaire droite et gauche avec des amplitudes égales. Les deux polarisations circulaires se propagent à des vitesses différentes et avec des absorptions différentes. Ainsi, le déphasage  $\Phi$  en sortie entre les vibrations circulaires est de :

$$\Phi = \frac{2\pi L}{\lambda} (n_g - n_d) \quad \text{Equation I. 10}$$

Il en résulte une rotation  $\theta_F$  du plan de polarisation de l'onde transmise. Cette rotation  $\theta_F$  est appelée rotation Faraday et est définie par [58] :

$$\theta_F = \frac{\Phi}{2} = \frac{\pi L}{\lambda} (n_g - n_d) = \frac{\pi L}{\lambda} \text{Re}(N_g - N_d) = \frac{\pi L}{\lambda} \text{Re}(\sqrt{\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}} - \sqrt{\epsilon_{xx} - \epsilon_{xy}}) \quad \text{Equation I. 11}$$

Sachant que les termes hors diagonaux  $\epsilon_{xy}$  sont petits devant les termes diagonaux  $\epsilon_{xx}$  ( $\epsilon_{xy} \ll \epsilon_{xx}$ ) on peut écrire :

$$N_g - N_d = \sqrt{\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}} - \sqrt{\epsilon_{xx} - \epsilon_{xy}} \approx \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad \text{Equation I. 12}$$

D'où :

$$\theta_F \approx \frac{\pi L}{\lambda} \text{Re}\left(\frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}}\right) \approx \frac{\pi L}{\lambda N} \text{Re}(\epsilon_{xy}) \approx \frac{\pi L}{\lambda N} \text{Re}(\text{Cte. } M_z) \quad \text{Equation I. 13}$$

Avec  $\lambda$  la longueur d'onde et  $N = \sqrt{\text{Re}(\epsilon_{xx})}$  l'indice de réfraction.

On peut alors également introduire la notion de facteur de mérite (M) comme facteur d'évaluation de la qualité des matériaux magnétiques. Ce facteur est défini comme le rapport entre la rotation Faraday et l'absorption  $\alpha$  du matériau [59] :

$$M = \frac{\theta_F}{\alpha} \quad \text{Equation I. 14}$$

De plus, les parties imaginaires  $\kappa_d$  et  $\kappa_g$  des indices complexes  $N_d$  et  $N_g$  induisent une absorption différente des vcd et vcg. Cela se traduit par l'apparition d'une ellipticité de l'onde appelée ellipticité Faraday  $\varepsilon_F$ , avec [58] :

$$\varepsilon_F = -\tanh\left[\frac{\pi L}{\lambda}(\kappa_g - \kappa_d)\right] = -\tanh\left[\frac{\pi L}{\lambda}\text{Im}(N_g - N_d)\right] \approx -\tanh\left[\frac{\pi L}{\lambda N}\text{Im}(\varepsilon_{xy})\right] \approx -\frac{\pi L}{\lambda N}\text{Im}(\varepsilon_{xy}) \quad \text{Equation I. 15}$$

Le dichroïsme circulaire magnétique (DCM) est défini comme étant la différence  $\Delta\kappa = \kappa_g - \kappa_d$ .

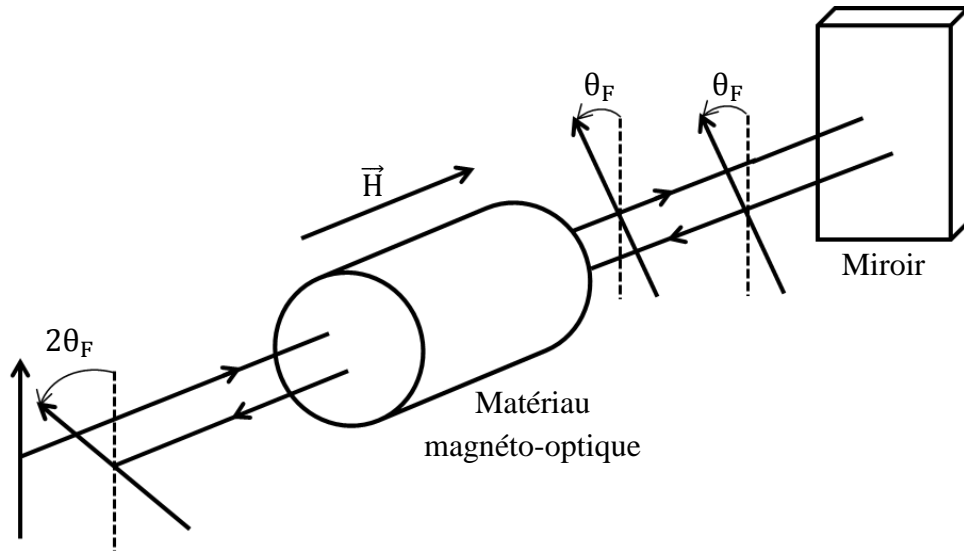


Figure I.11 : Illustration du caractère non-réciproque de l'effet Faraday.

Un caractère remarquable de l'effet Faraday est sa non-réciprocité. Comme  $\theta_F$  est proportionnel à l'aimantation, une inversion du sens de  $\vec{H}$  entraîne une inversion du sens de  $\theta_F$ . Sur la figure I.11, dans le sens aller, la direction de propagation de la lumière et la direction du champ magnétique  $\vec{H}$  sont dans le même sens. De ce fait, un observateur qui se dirige suivant la direction de propagation de la lumière observe une rotation du plan de polarisation vers sa gauche. Par contre, si le sens de propagation de la lumière est inversé tandis que la direction de  $\vec{H}$  est maintenue, l'observateur qui se dirige toujours suivant la direction de propagation de la lumière observe une rotation de polarisation vers sa droite. Ceci signifie que par rapport au laboratoire, la rotation a lieu dans le même sens. Par conséquent, si l'on fait passer successivement le faisceau lumineux en sens opposés dans le même échantillon d'épaisseur  $L$ , la rotation sera  $2\theta_F$ .

### I.3. Cristaux magnéto-photoniques

Pour qu'une structure périodique soit référencée comme un cristal magnéto-photonique, il suffit que l'un de ces constituants présente un comportement magnétique.

Dans cette partie nous donnons un aperçu général des cristaux magnéto-photoniques. Le but principal est de souligner les différents résultats, notamment les modifications spectrales ainsi que les modifications des valeurs de la rotation Faraday et les variations du facteur de mérite dans les cristaux magnéto-photoniques. Quelques exemples d'applications sont ensuite présentés.

#### I.3.1. Etat de l'art

Dans cette partie, d'état de l'art des cristaux magnéto-photoniques, le but est de comprendre le comportement général de ces structures ainsi que le rôle que joue l'arrangement périodique sur la modification des propriétés magnéto-optiques. D'abord, quelques travaux qui traitent des cristaux magnéto-photoniques 1D sont détaillés, puis certains travaux concernant des cristaux magnéto-photoniques 2D. Finalement, la totalité des travaux à notre connaissance qui traitent des cristaux magnéto-photoniques 3D sont détaillés.

##### I.3.1.1. Cristaux magnéto-photoniques 1D

Les cristaux magnéto-photoniques 1D sont des empilements de couches diélectriques et magnétiques. Ces hétérostructures sont caractérisées par une réponse magnéto-optique exaltée. Les travaux ci-dessous présentent quelques résultats expérimentaux et théoriques concernant la réponse magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 1D.

Inoue *et al* [4-8] ont réalisé deux types de cristaux magnéto-photoniques 1D. La première structure  $(\text{Bi:YIG}/\text{SiO}_2)_5/\text{Bi:YIG}$  est dite « structure périodique » (figure I.12.a). Elle alterne des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction (Bi:YIG) avec des couches d'un matériau à bas indice de réfraction ( $\text{SiO}_2$ ). Tandis que la deuxième structure  $(\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2)_5/\text{Bi:YIG}/(\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5)_5$  est dite « structure microcavité » (figure I.13.a). Elle est formée d'une couche magnéto-optique (Bi:YIG) confinée entre deux réseaux de Bragg. Ces derniers alternent des couches de matériaux respectivement à haut ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) et bas ( $\text{SiO}_2$ ) indices de réfraction. La couche centrale correspond à un défaut qui laisse passer la lumière au centre de la BIP. La figure I.12.a montre une image MEB de la structure périodique. On observe sur la figure I.12.b une augmentation de la valeur de la rotation Faraday en bords de la BIP. En effet, un premier pic est observé en bord inférieur vers une longueur d'onde de 750 nm et un deuxième pic plus large est observé en bord supérieur vers une longueur d'onde de 1050 nm.

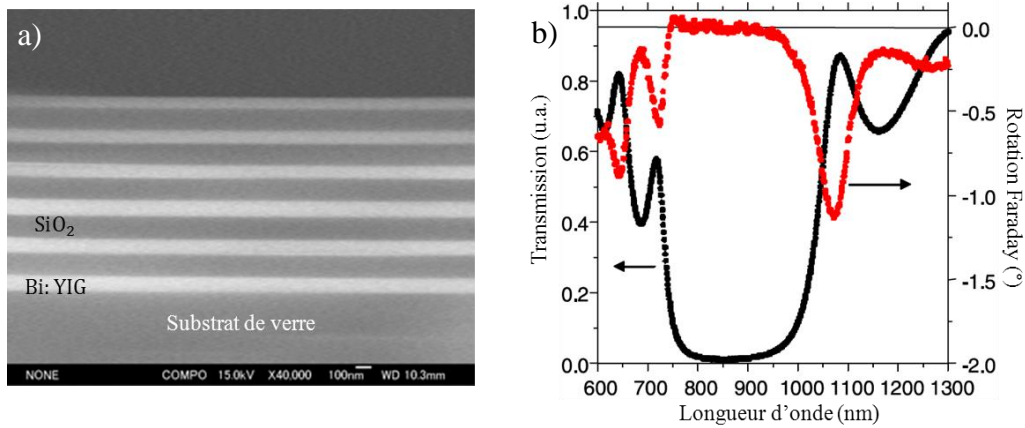


Figure I.12 : Structure périodique : a) Image MEB, b) transmission et rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde [7].

La figure I.13.a montre une image MEB de la structure microcavité. On observe sur la figure I.13.b une résonnance de la valeur de la transmittance ainsi qu'une augmentation de la valeur de la rotation Faraday à l'intérieur de la BIP ( $\approx 720$  nm). En effet, la valeur de la rotation Faraday est 10 fois supérieure à celle d'une couche de Bi:YIG de référence. Ces résultats expérimentaux sont en concordance avec les prédictions théoriques.

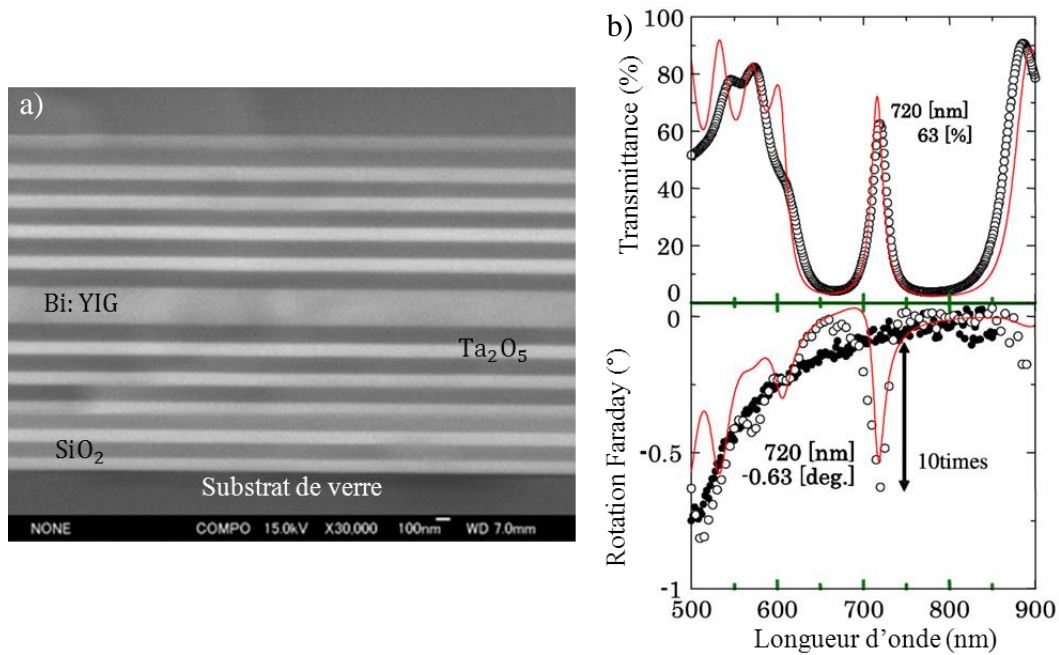


Figure I.13 : Structure microcavité : a) Image MEB, b) les courbes en trait plein, cercles vides, représentent respectivement les valeurs théoriques, expérimentales, de la transmittance et rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde. La courbe en cercles pleins représente les valeurs expérimentales de la rotation Faraday d'une couche de **Bi:YIG** de référence [7].

D'autres auteurs ont également modélisé théoriquement et montré expérimentalement l'exaltation de la valeur de la rotation Faraday dans des cristaux magnéto-photoniques 1D en forme de structures en microcavités [11]. Les principales différences entre ces réalisations et celle d'Inoue *et al* sont l'utilisation d'autres matériaux diélectriques et magnéto-optiques ainsi que la variation des épaisseurs des couches qui constituent la structure.

Pratiquement, le nombre de réflexions que subit l'onde électromagnétique à l'intérieur des cristaux photoniques 1D, structures périodiques et microcavités, conduit à la diminution qualitative de la vitesse de groupe de l'onde. Cela augmente le temps d'interaction entre l'onde et la matière. Ainsi, l'exaltation de la valeur des effets magnéto-optiques respectivement en bord et à l'intérieur de la BIP est possible [3].

Kahl *et al* [9] ont réalisé une structure microcavité de la forme  $(\text{BIG}/\text{YIG})_4/\text{BIG}_4/(\text{YIG}/\text{BIG})_4$ . Au centre de la BIP ( $\approx 750$  nm), la valeur du facteur de mérite est exaltée de 1,7 fois par rapport à une couche de référence BIG/GGG.

Les travaux précédents montrent que la position centrale de la BIP peut être contrôlée en modifiant la valeur des épaisseurs des couches diélectriques et magnéto-optiques qui constituent la structure 1D. De plus, l'exaltation des valeurs des effets magnéto-optiques, en bord ou à l'intérieur de la BIP, est envisageable en utilisant plusieurs types de matériaux.

D'autres auteurs ont cherché à optimiser l'exaltation des effets magnéto-optiques dans les cristaux magnéto-photoniques 1D. Ainsi, plusieurs défauts sont introduits dans la structure périodique 1D pour réaliser une structure « multi-cavités ». La figure I.14 illustre ce type de structures.

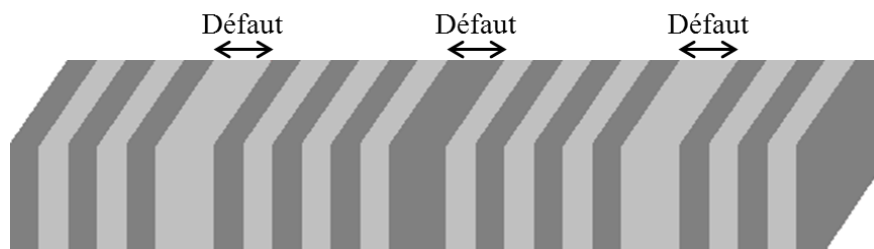


Figure I.14 : Représentation schématique de la structure multi-cavités.

Levy *et al* [10] ont utilisé des structures multi-cavités qui alternent un matériau magnéto-optique (Ce:YIG) à haut indice de réfraction ( $n_M = 2,21$ ) avec un matériau diélectrique (GGG) à bas indice de réfraction ( $n_N = 1,926$ ), pour montrer théoriquement qu'on peut atteindre une valeur de rotation Faraday de  $45^\circ$ . Cette dernière est nécessaire pour la réalisation d'un isolateur Faraday par exemple [60].

On retient de ces travaux que la structuration périodique 1D est un moyen efficace pour exalter la valeur de la rotation Faraday en bords de la BIP. De plus, l'introduction des défauts au sein de cette structure conduit à une exaltation à l'intérieur de la BIP.

### I.3.1.2. Cristaux magnéto-photoniques 2D

Les travaux expérimentaux ainsi que les modélisations théoriques qui traitent des cristaux magnéto-photonique 2D, notamment les études et publications qui illustrent le comportement et modifications des effets magnéto-optiques dans ce type de structures, sont nettement moins nombreux que ceux qui traitent des cristaux magnéto-photoniques 1D.

A.A. Jalali et A.T. Friberg ont étudié théoriquement la possibilité d'exalter la valeur de la rotation Faraday en utilisant un cristal magnéto-photonique 2D [61]. La figure I.15.a montre

une structure 2D formée de trous cylindriques d'air dans une couche d'un matériau diélectrique avec un défaut au centre formé d'une couche de BIG d'épaisseur  $3a$  où  $a$  est le pas de réseau. Cette structure est illuminée sous incidence normale par une onde polarisée TM, le champ électrique est orienté parallèlement au plan d'incidence. La figure I.15.b et la figure I.15.b représentent respectivement la transmittance et la rotation Faraday en fonction de  $\omega a/2\pi c$  où  $\omega$  est la pulsation et  $c$  la vitesse de la lumière.

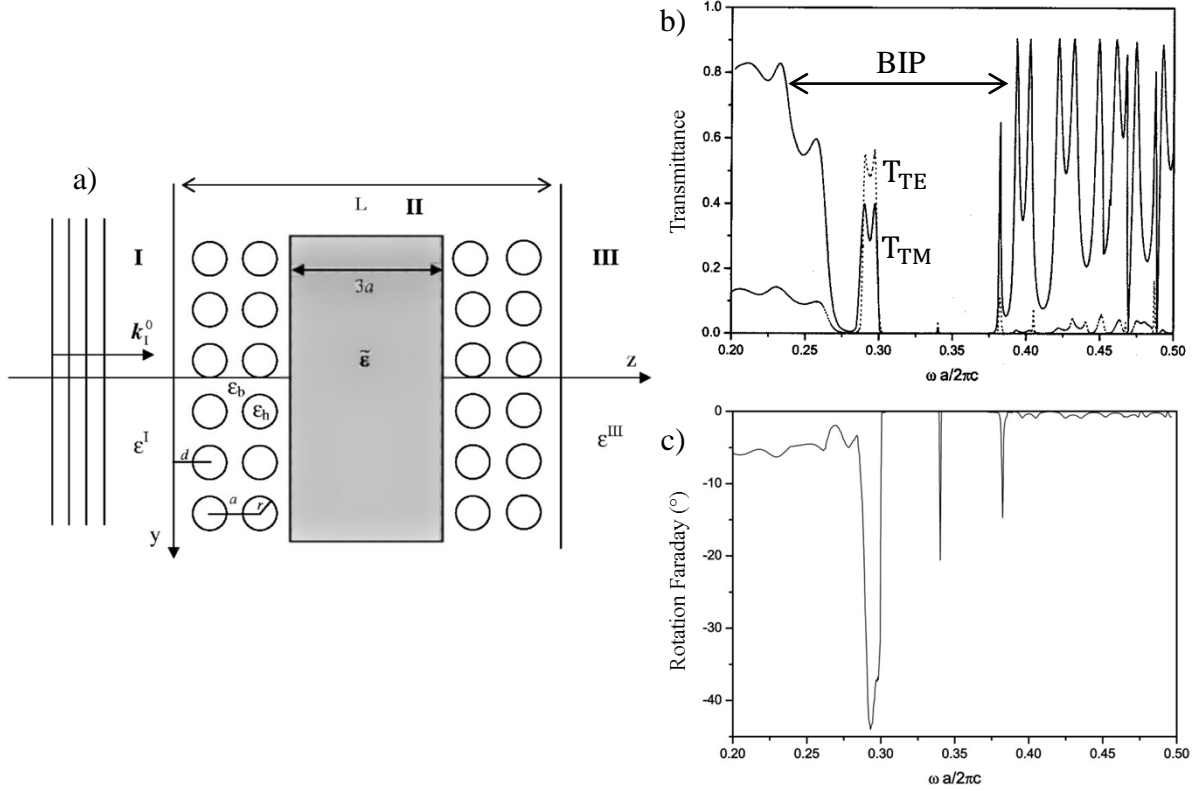


Figure I.15 : a) Structure 2D utilisée, b) transmittance pour le mode TM ( $T_{TM}$ ) et le mode TE ( $T_{TE}$ ) et c) rotation Faraday en fonction de la fréquence normalisée [61].

Une exaltation de la valeur de la rotation Faraday est observée dans la zone où se trouve le pic de résonance à l'intérieur de la BIP. Cette valeur est trois fois supérieure à celle de la valeur de la rotation Faraday intrinsèque du BIG. Ces travaux montrent théoriquement que l'exaltation de la valeur des effets magnéto-optiques est également possible en utilisant les cristaux magnéto-photoniques 2D.

Baek *et al* [62] ont fabriqué et réalisé la caractérisation magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques quasi-2D en variant l'angle d'incidence de la lumière sur l'échantillon. La structure considérée est formée d'un réseau en barres de résine photosensible, réalisé sur un substrat de quartz en utilisant la lithographie par faisceau d'électrons. Au-dessus de ce réseau, un dépôt de couches  $(\text{Bi:YIG}/\text{SiO}_2)^7$  est réalisé en utilisant la pulvérisation cathodique radiofréquence. La figure I.16.a présente la transmittance en fonction de la longueur d'onde de cette structure pour une onde polarisée TM ( $T_{TM}$ ) et une onde polarisée TE ( $T_{TE}$ ), le champ électrique est orienté perpendiculairement au plan d'incidence. Cette figure présente également la transmittance d'un cristal magnéto-photonique 1D de référence ( $T_{1DMPC}$ ). La figure I.16.b montre les rotations Faraday correspondantes.

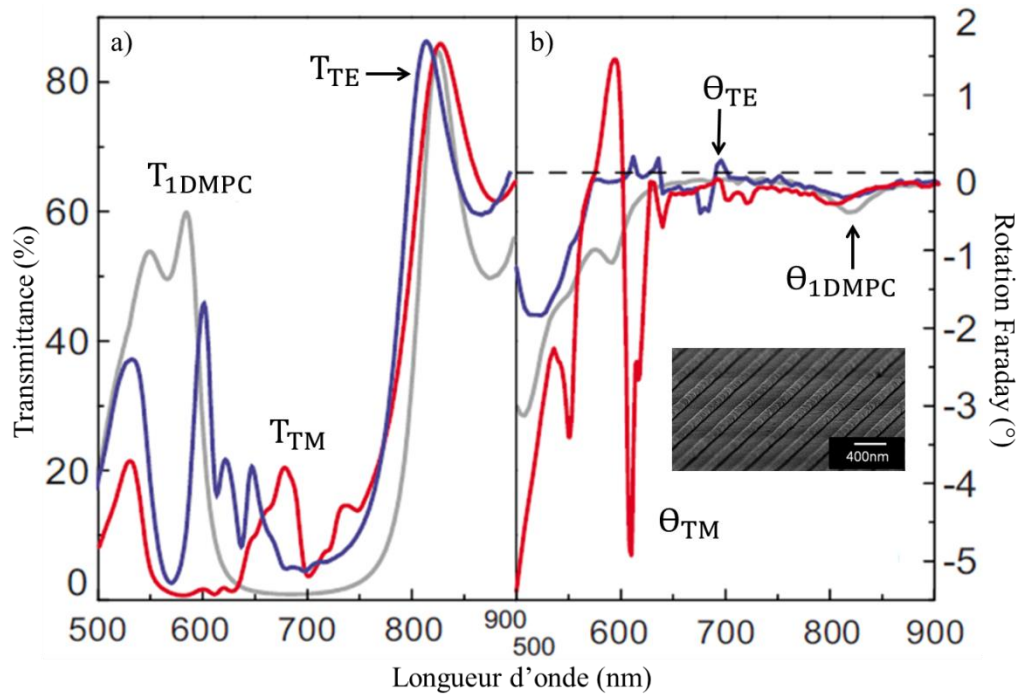


Figure I.16 : Transmittance (a) et rotation Faraday (b) en fonction de la longueur d'onde du cristal magnéto-photonique quasi-2D et du cristal magnéto-photonique 1D de référence. L'intérieur de la figure (b) montre une image MEB de la surface du réseau en barres de résine photosensible utilisé pour la fabrication du cristal magnéto-photonique quasi-2D [62].

$T_{1DMPC}$  présente une BIP de 600 nm à 850 nm. Un pic de résonance est respectivement observé à l'intérieur de la BIP de  $T_{TM}$  et  $T_{TE}$ . La valeur de  $\theta_{TM}$  par rapport à  $\theta_{1DMPC}$  présente une exaltation ainsi qu'un changement de signe. Cette exaltation coïncide avec le bord inférieur de la BIP de la structure 1D de référence ( $\approx 600$  nm). En effet, en variant l'angle d'incidence de la lumière sur l'échantillon, les auteurs ont cherché la meilleure configuration qui permet de confiner la lumière à l'intérieur de la structure quasi-2D. Cela conduit à l'augmentation du temps d'interaction entre l'onde et la matière. Ainsi, la valeur de la rotation Faraday est exaltée.

De même que pour les cristaux magnéto-photoniques 1D, l'ensemble de ces travaux montre que la structuration périodique 2D est un moyen efficace qui permet d'exalter la valeur de la rotation Faraday.

### I.3.1.3. Cristaux magnéto-photoniques 3D

Dans la littérature, les travaux qui traitent de la modification des effets magnéto-optiques dans les cristaux magnéto-photoniques 3D ne sont pas nombreux. Dans ce paragraphe, on détaille la totalité de ces travaux et publications à notre connaissance. Au contraire des cristaux magnéto-photoniques 1D, la fabrication d'un cristal magnéto-photonique 3D, en utilisant le YIG comme matériaux magnéto-optique, est apparemment difficile. De ce fait, la plupart des cristaux magnéto-photoniques 3D, reportés dans la littérature, sont élaborés à partir des opales.

Koerdt *et al* [20] ont fabriqué des opales directes de silice d'épaisseur 1 mm. Le diamètre des microbilles de silice utilisées est égal à 260 nm. Par imprégnation, les pores des opales directes sont remplis avec une solution paramagnétique de glycérol saturée de dysprosium-nitrate à forte constante de verdet.

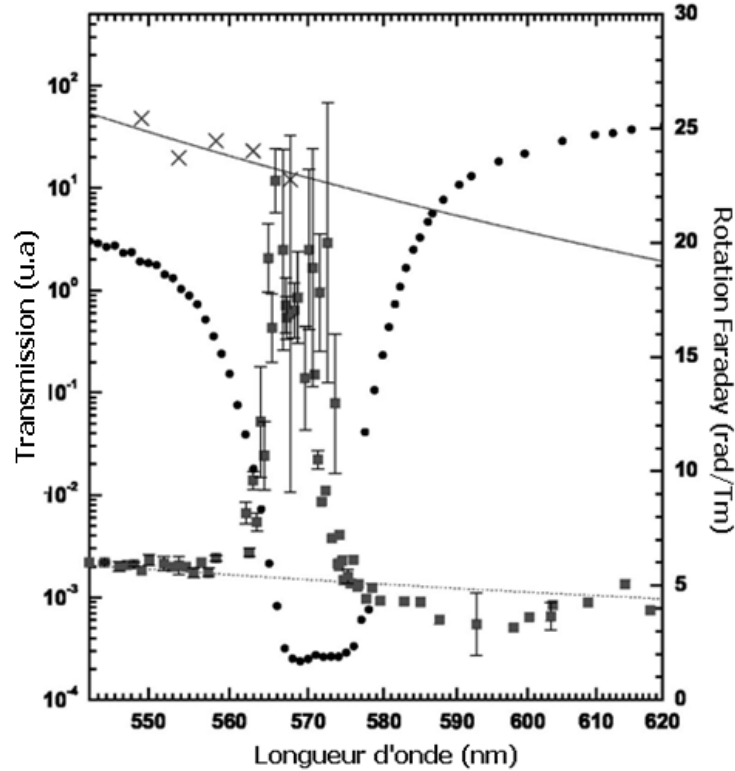


Figure I.17 : Les cercles, carrés, représentent respectivement la transmission, rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde de la structure 3D réalisée. Les lignes en haut, bas de la figure, représentent respectivement les valeurs théoriques de la rotation Faraday de la solution paramagnétique liquide non corrigée, corrigée par sa fraction volumique. Les croix représentent les valeurs expérimentales de la rotation Faraday de la solution paramagnétique liquide [20].

La figure I.17 présente le résultat de la caractérisation magnéto-optique de la structure 3D réalisée. La courbe de transmission souligne la présence d'une BIP vers 573 nm. La comparaison de la courbe de rotation Faraday de la structure 3D à celle de la solution paramagnétique liquide corrigée par sa fraction volumique, montre une exaltation de la valeur de la rotation Faraday à l'intérieur de la BIP. Cette valeur passe de l'ordre de 5 rad/Tm à 20 rad/Tm. A l'extérieur de la BIP, le comportement est identique. Une modification spectrale de la rotation Faraday à l'intérieur de la BIP est également montré par Murai *et al* [21]. Pour fabriquer leurs cristaux magnéto-photoniques 3D, ces auteurs ont utilisé des microbilles de silice de diamètre 263 nm qui contiennent en volume 21,2% des nanoparticules magnétiques de maghémite. La structure finale a une épaisseur d'environ 10  $\mu$ m.



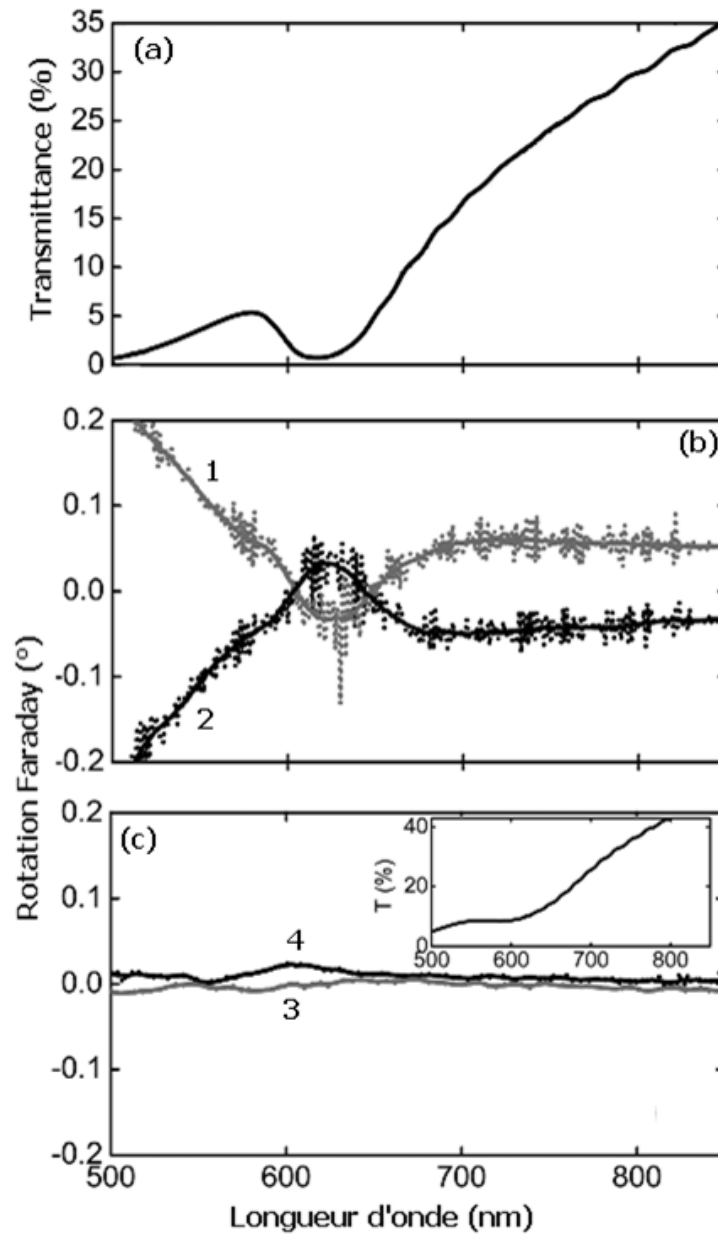


Figure I.18 : a) Transmittance et b) rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde d'un cristal magnéto-photonique 3D en appliquant un champ magnétique extérieur de (1) -15 kOe, (2) +15 kOe, c) rotation Faraday d'une structure de référence non magnétique en appliquant un champ magnétique extérieur de (3) -15 kOe, (4) +15 kOe. L'insert de c montre la transmittance de la structure de référence [21].

La figure I.18.a souligne la présence d'une BIP vers 620 nm. La modification de la valeur de la rotation Faraday au milieu de cette BIP est montrée sur la figure I.18.b. En effet, en comparant la rotation Faraday du cristal magnéto-photonique 3D (figure I.18.b) à celle de la structure de référence non magnétique (figure I.18.c), un léger pic de rotation est observé vers 620 nm.

Ces travaux montrent qu'une modification du comportement spectral de la rotation Faraday est envisageable à l'intérieur de la BIP. On note également que le rapport signal sur bruit des courbes spectrales de rotation Faraday est faible.

D'autres travaux ont montré des modifications spectrales des effets magnéto-optiques en bords de la BIP. Baryshev *et al* [23] ont fabriqué des cristaux magnéto-photoniques 3D en utilisant des opales artificielles de microbilles de silice de diamètre de l'ordre de 300 nm disponibles dans le commerce. Par imprégnation, les pores qui constituent 26% du volume total de l'opale, sont remplis avec différents types de matériaux magnétiques. En conséquence, différentes structures (opale- $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , opale- $\text{Bi}_{0,5}\text{Y}_{2,5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ , opale- $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ , opale-TGG) sont fabriquées. La caractérisation optique montre que la BIP de l'opale directe non dopée et celles des structures dopées sont observées à la même position. Elle montre également que l'augmentation de la fraction volumique du matériau magnétique conduit à la diminution de la transmission des structures dopées synthétisées. Dans ces dernières, l'amplitude de la BIP a notamment diminuée.

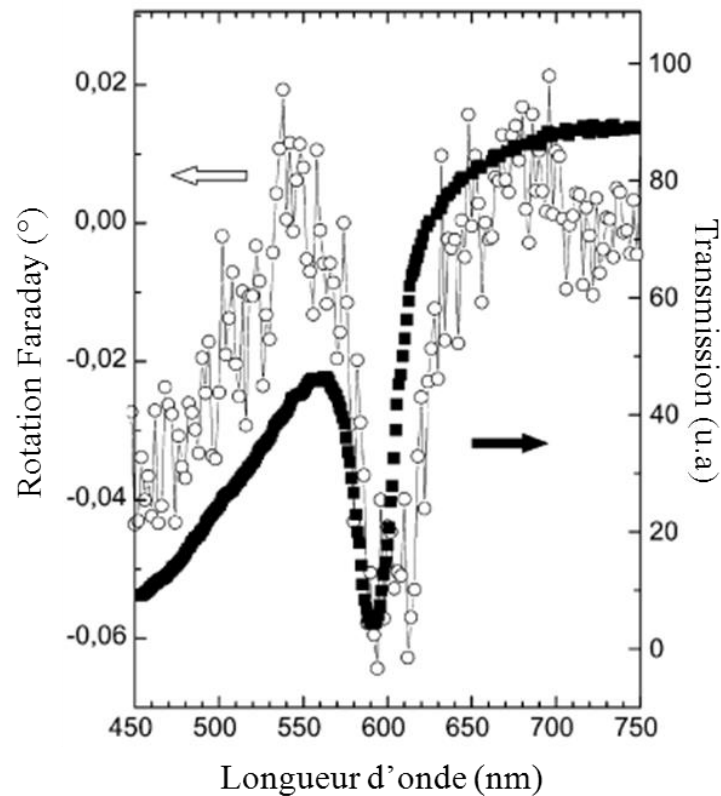


Figure I.19 : Transmission (carrés remplis) et rotation Faraday (cercles vides) en fonction de la longueur d'onde d'une opale-magnétite [23].

La courbe de transmission de la figure I.19 montre une BIP vers 590 nm. Un phénomène de résonance est observé sur la courbe de rotation Faraday d'une opale-magnétite. Cette modification spectrale est observée en bords de la BIP. En effet, un pic de rotation est observé en bord inférieur tandis qu'un autre pic de sens opposé est observé en bord supérieur de la BIP. Le rapport signal sur bruit de la courbe spectrale de rotation Faraday est faible.

Pavlov *et al* [22] ont également étudié le comportement de la rotation Faraday d'une opale de silice dont les interstices sont remplis avec de la magnétite (20% à 70%). Le diamètre des microbilles de silice utilisée est de l'ordre de 290 nm. Les structures réalisées ont une épaisseur d'environ 5  $\mu\text{m}$ .

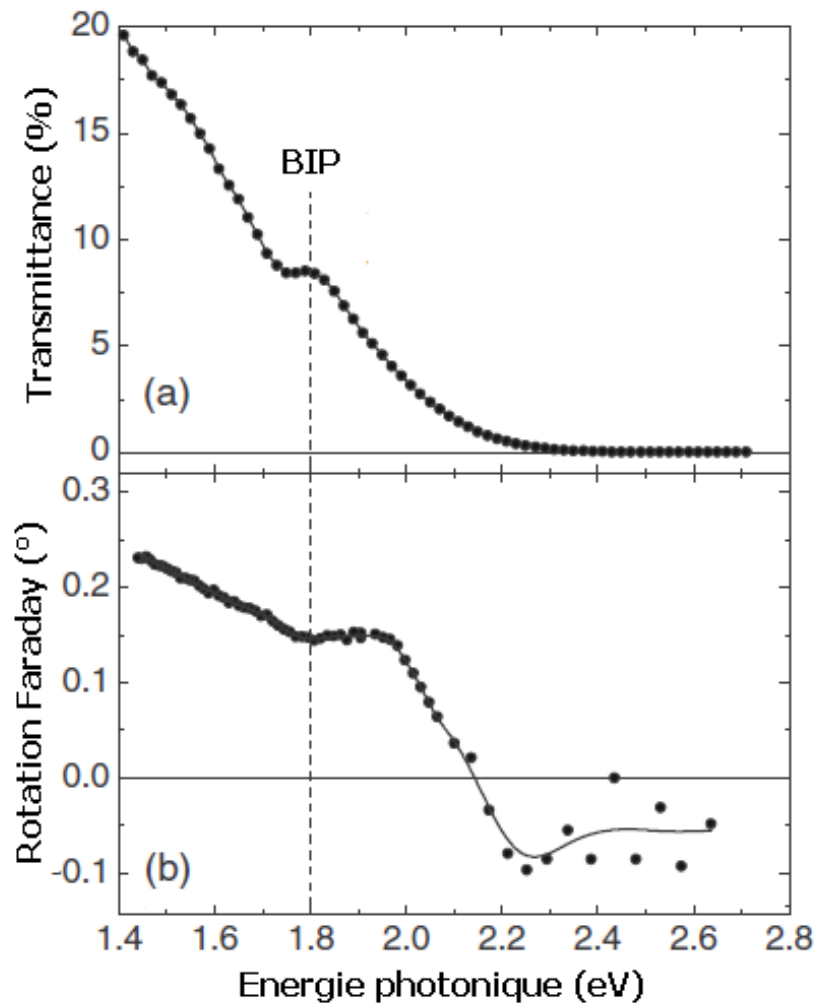


Figure I.20 : a) Transmittance et b) rotation Faraday en fonction de l'énergie photonique d'une opale-magnétite dont les pores sont remplis à 70% [22].

Les mesures illustrées sur la figure I.20.a sont réalisées à incidence normale au plan (111). Une BIP est obtenue vers à 689 nm. D'après les auteurs, une modification de la rotation Faraday est observée au voisinage de cette BIP. Cette information n'est pas clairement observable sur la figure I.20.b. On note que ces auteurs ont montré une exaltation importante de la valeur de l'effet Kerr au voisinage de la BIP.

Parmi les auteurs qui se sont intéressés à l'évolution spectrale de la rotation Faraday dans les cristaux magnéto-photoniques 3D, Šimkienė *et al* [24] ont caractérisé dans le domaine visible (400 nm à 800 nm), des opales modifiées par des nanoparticules de cobalt. La sédimentation gravitationnelle est la technique utilisée pour élaborer les opales à partir d'une solution de microbilles de silice dont le diamètre varie entre 250 nm et 300 nm. Les nanoparticules de cobalt (1 nm à 8 nm) sont formées à l'intérieur de l'opale par une réaction chimique de réduction. En se basant sur la modification de la position de la BIP, les auteurs ont montré que les nanoparticules de cobalt occupent 2% du vide dans les opales.

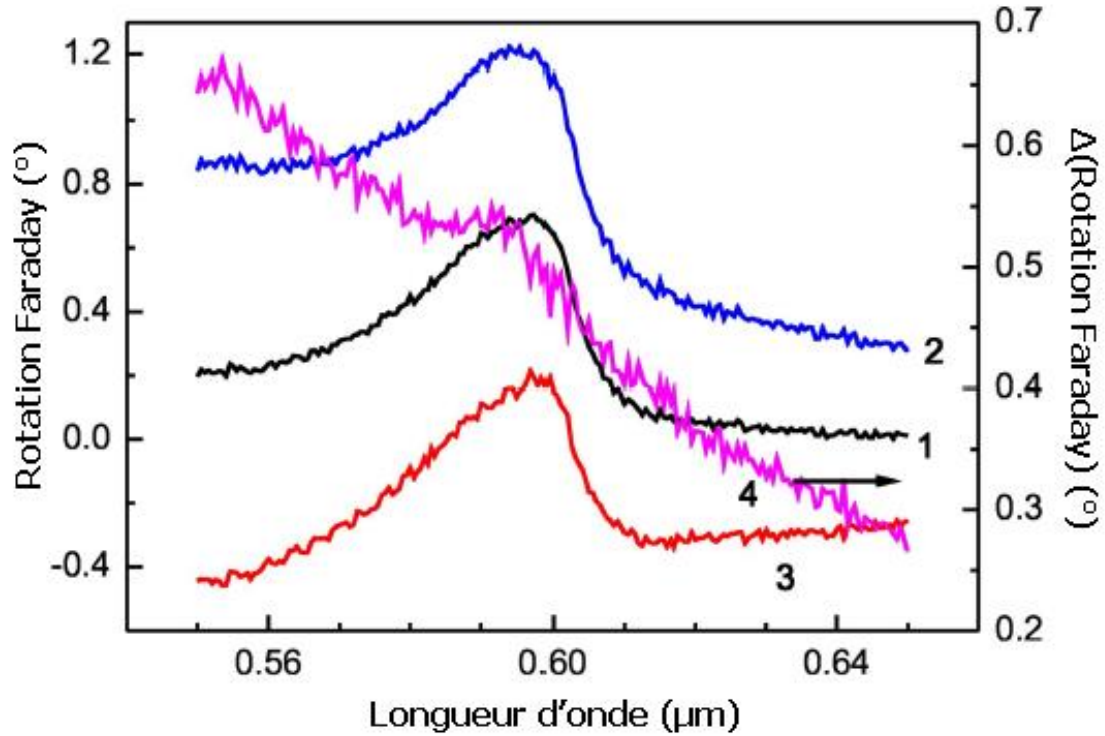


Figure I.21 : Rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde de l'opale réalisée (1) sans l'application d'un champ magnétique, (2) en appliquant un champ magnétique de +350 mT, (3) en appliquant un champ magnétique de -350 mT, (4) la courbe de rotation Faraday résultante [24].

La figure I.21 montre le résultat de la caractérisation magnéto-optique de l'opale réalisée. D'après les auteurs, la valeur de la rotation Faraday est exaltée au voisinage de la BIP (vers 605 nm). Cette information n'est pas clairement observable sur la figure I.21 représentée à l'appui.

Caicedo *et al* [25] se sont intéressés plutôt à l'étude spectrale dans le domaine visible (400 nm à 800 nm) du DCM dans des opales inverses. Tout d'abord, la technique du dépôt vertical est utilisée pour élaborer les opales directes à partir du processus d'auto-arrangement des microbilles de polystyrène (diamètre  $\approx 320$  nm) sur un substrat de verre hydrophile. Ensuite, une couche d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  d'épaisseur contrôlable est déposée par un procédé de dépôt de couches minces atomiques (ALD) autour des microbilles de polystyrène. Enfin le toluène est utilisé pour dissoudre le polystyrène. Les opales inverses résultantes sont infiltrées avec des nanoparticules de nickel (Ni) monodisperses (diamètres  $\approx 8$  nm et 15 nm) par un processus d'imprégnation.

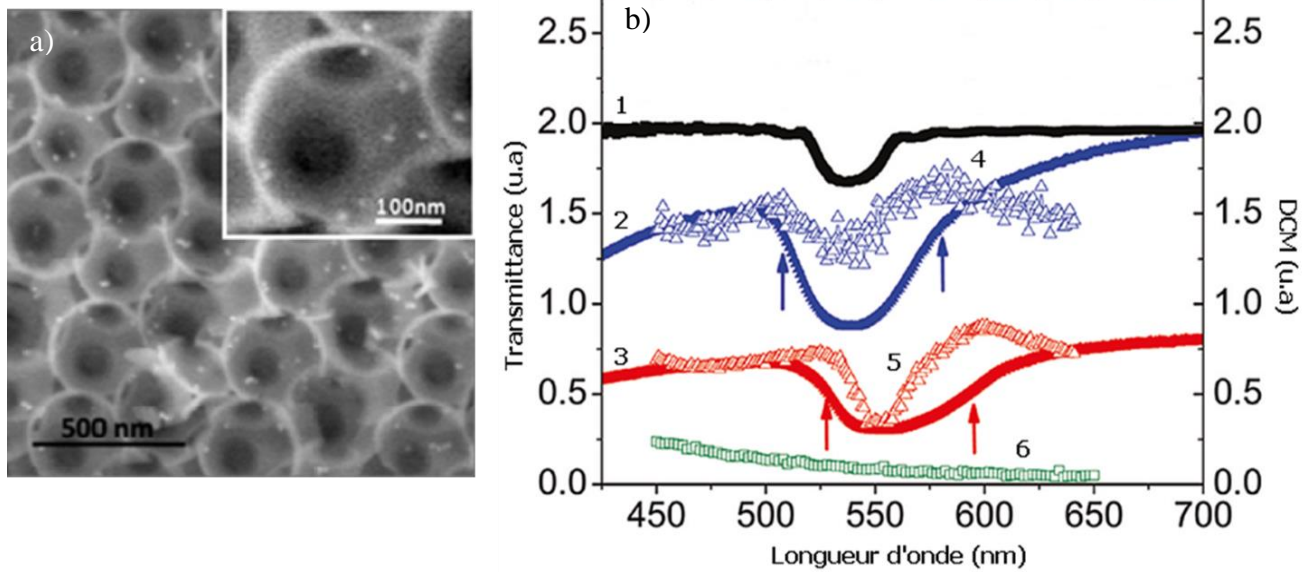


Figure I.22 : a) Image MEB de l'opale infiltrée avec des nanoparticules de Ni, b) transmittance (1) d'une opale non magnétique, (2) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx 15$  nm), (3) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx 8$  nm) et DCM (4) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx 15$  nm), (5) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx 8$  nm), (6) d'une couche de référence de Ni sur un substrat de verre en fonction de la longueur d'onde. Les flèches indiquent les zones où la valeur de l'effet magnéto-optique est exaltée [25].

Les résultats de la caractérisation magnéto-optique sont reportés sur la figure I.22.b. On remarque que pour les opales non-infiltrées, la BIP se positionne vers 537 nm (figure I.22.b.1). En outre, pour les opales infiltrées, un décalage vers le rouge est souligné. Ce décalage est peu significatif pour les nanoparticules de Ni de 15 nm (figure I.22.b.2). Néanmoins, ce décalage est de l'ordre de 18 nm pour ceux de 8 nm (figure I.22.b.3). Les auteurs ont mis en évidence une modification significative du comportement spectral du DCM de l'opale inverse infiltrée (figure I.22.b.4 et figure I.22.b.5) par rapport à une couche de référence de Ni sur verre (figure I.22.b.6). Cette modification spectrale se manifeste par la présence d'un pic de DCM en bords de la BIP. Les flèches sur la figure I.22 indiquent les zones d'exaltation, et d'une atténuation qui nous semble plus importante au centre de la BIP. La modification spectrale du DCM dans le cas des nanoparticules de Ni de 8 nm (figure I.22.b.5) nous paraît plus importante que celle dans le cas des nanoparticules de Ni de 15 nm (figure I.22.b.4). Le rapport signal sur bruit est également meilleur. Ces résultats montrent qu'en plus de la rotation Faraday, la structuration 3D influe également sur le comportement spectral du DCM.

A notre connaissance, seul Volotinen *et al* [26] ont reporté simultanément sur des modifications du comportement spectral de la rotation Faraday et du DCM. La structure 3D est élaborée à partir des microbilles de silice de diamètre de 440 nm. Ces dernières sont imprégnées de nanoparticules magnétiques de  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  de diamètre de 8 nm. Afin d'orienter les nanoparticules magnétiques, l'auto-arrangement des microbilles de silice est réalisé sous un champ externe de 3000 Oe, perpendiculaire à la surface du substrat.

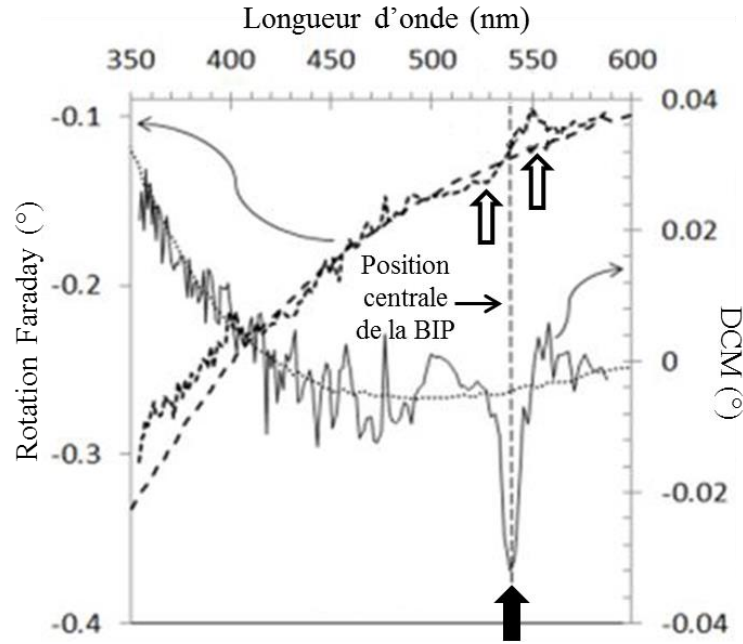


Figure I.23 : Rotation Faraday (°) et DCM (°) en fonction de la longueur d'onde (nm) de la structure 3D (en trait plein) et du substrat de saphir (en pointillé). Les flèches indiquent les positions où les modifications spectrales sont observées [26].

Les résultats de la caractérisation magnéto-optique sont reportés sur la figure I.23. La position centrale de la BIP est à 540 nm. En comparant la rotation Faraday de la structure 3D à celle du substrat de saphir on discerne deux légers pics de rotation de sens opposé de part et d'autre (528 nm et 551 nm) de la BIP. L'amplitude du deuxième pic de rotation est visiblement plus importante. Une modification semblable est également reportée par Baryshev *et al.* En outre, le DCM présente un pic intéressant à 539 nm, donc au niveau du centre de la BIP. Notons que le rapport signal sur bruit de la représentation spectrale de rotation Faraday est meilleur que celui du DCM.

Pour résumer, les travaux détaillés ci-dessus surlignent l'effet de la structuration 3D sur la modification des effets magnéto-optiques. En effet, certains résultats montrent une exaltation par rapport à une référence de la valeur des effets magnéto-optiques en bord ou au centre de la BIP, alors que pour d'autres il s'agit d'une modification spectrale des effets magnéto-optiques au niveau de la BIP. De plus, ces modifications sont clairement visibles dans certains travaux tandis qu'elles ne le sont pas forcément dans d'autres. En conséquence, on peut conclure qu'en utilisant les cristaux magnéto-photoniques 3D, l'exaltation de la valeur des effets magnéto-optiques, notamment la valeur de la rotation Faraday, n'est pas aussi évidente comme dans le cas des cristaux magnéto-photoniques 1D et 2D.

### I.3.2. Quelques applications des cristaux magnéto-photoniques

Les avantages des cristaux magnéto-photoniques, dues principalement à la structuration qui conduit à la formation des bandes interdites photoniques et à l'augmentation des interactions ondes-matière en bord de ces bandes, peuvent être utilisés afin d'exalter les valeurs des effets magnéto-optiques. Différentes applications qui utilisent les cristaux magnéto-photoniques 1D

et 2D sont présentées dans la littérature. Par contre, les applications qui utilisent les cristaux magnéto-photoniques 3D sont peu répandues. Dans ce qui suit, quelques applications qui traitent des cristaux magnéto-photoniques sont soulignées.

Kono et Koshiba [63] ont présenté le décalage de phase non-réciproque des modes TE dans des guides d'onde à cristaux magnéto-photoniques. Cet effet entraîne une différence de constante de propagation de la lumière dans le guide entre le sens aller et le sens retour.

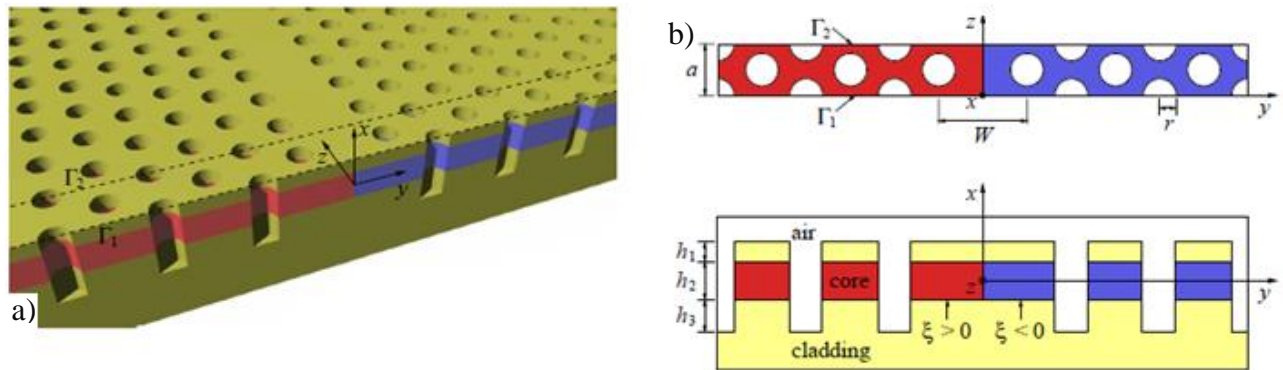


Figure I.24 : Structure magnéto-photonique 2D a) représentation schématisée, b) vue de dessus et vue de côté d'une coupe transversale [63].

La structure magnéto-photonique 2D étudiée (figure I.24) est constituée de deux domaines magnétiques aimantés dans les directions opposées et parallèlement à l'axe  $x$ . La géométrie de la structure consiste à confiner une couche magnétique d'épaisseur  $h_2$  ( $n = 2,3$ ) entre deux couches diélectriques ( $n = 1,45$ ). Des trous d'air disposés en hexagone traversent l'épaisseur des trois couches. Les auteurs ont cherché à modéliser au mieux la géométrie de cette structure 2D afin d'améliorer l'effet non-réciproque de décalage de phase. Les résultats montrent que la hauteur de la couche magnétique ne joue pas un rôle prépondérant sur l'effet non-réciproque tandis que la diminution de la largeur  $W$  du guide conduit à augmenter ce dernier. Pour minimiser les pertes optiques, il convient que la couche diélectrique supérieure soit relativement mince et que les trous d'air soient suffisamment profonds. Ces travaux sont intéressants pour la réalisation d'un isolateur intégré à base de décalage de phase non-réciproque [64].

Wang et Fan [65] ont présenté la conception d'un circulateur à base de nanocavité résonnante couplée à trois guides d'ondes. La structure proposée est un cristal magnéto-photonique 2D formée de trous d'air dans une couche de BIG où un défaut ponctuel est introduit au centre pour réaliser la nanocavité résonnante. Trois défauts linéaires sont introduits pour réaliser les trois ports du circulateur. Le défaut ponctuel consiste à diminuer le diamètre d'un trou d'air tandis que le défaut linéaire consiste à augmenter le diamètre d'un ensemble de trous d'air afin de réaliser un guide d'onde.



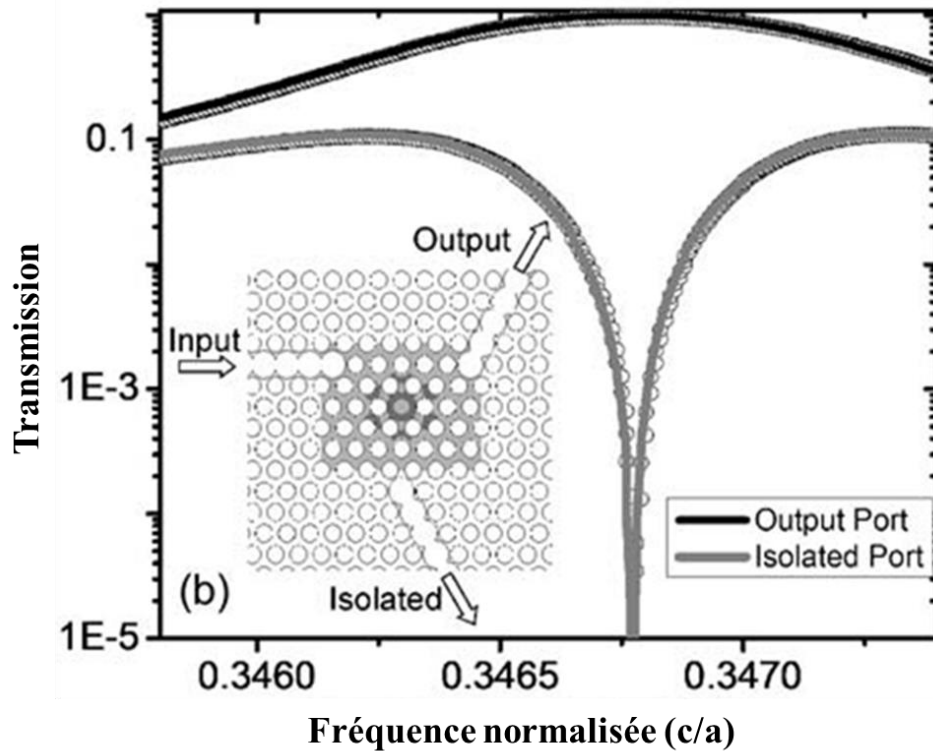


Figure I.25 : Transmission en fonction de la fréquence normalisée ( $c/a$ ) au niveau du port de sortie et du port d'isolation d'un circulateur à trois ports. L'intérieur de la figure montre une représentation schématisée du cristal magnéto-photonique 2D utilisé pour réaliser le circulateur à trois ports [65].

La figure I.25 représente la transmission en fonction de la fréquence normalisée ( $c/a$ ) au niveau du port de sortie ainsi que du port d'isolation du circulateur à trois ports dont la représentation schématisée est montrée à l'intérieur de la figure. Les deux modes propres dégénérés de la nanocavité non perturbée se couplent sous l'effet de l'aimantation, qui induit ainsi deux modes contrarotatifs. L'effet magnéto-optique dépend de la force de couplage de ces deux modes. Ainsi, pour maximiser ce facteur les auteurs proposent une nanocavité incluant des zones magnéto-optiques aimantées dans des directions opposées. Ces zones sont représentées en gris sombre et clair sur le schéma du circulateur à trois ports. Une isolation de 30 dB entre les deux portes de sortie a été démontrée à 1550 nm.

Smigaj *et al* [66] ont présenté une approche de conception des nanocavités résonnantes utilisées dans les circulateur et isolateurs à base des cristaux magnéto-photoniques. En effet, ces auteurs ont proposé une méthode d'analyse qui permet d'élaborer la géométrie optimale de la nanocavité qui inclut des anneaux magnéto-optiques aimantés uniformément ainsi que des zones non magnéto-optiques. Un circulateur formé de cette nanocavité couplée à trois guides en cristaux photoniques est étudié. Une isolation de 20 dB a été obtenue avec une bande passante  $\Delta\omega = 0,00011(2\pi c/a)$ , où  $a$  est le pas du réseau, à 1300 nm.

L'ensemble des travaux précédents montre que les applications qui utilisent des cristaux magnéto-photoniques 1D et 2D sont répandues dans la littérature. Evidemment, ce n'est pas le cas avec les cristaux magnéto-photoniques 3D. Les travaux actuels concernent plutôt le développement des matériaux novateurs ainsi que l'amélioration de la qualité des matériaux



afin d'exalter au mieux la valeur des effets magnéto-optiques et du facteur de mérite. De ce fait, dans la partie ci-dessous, on présente tout d'abord un aperçu général sur les principaux matériaux susceptibles d'être utilisés dans l'intégration des composants à effet non-réciproque. Ensuite, on expose le matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C à partir d'un procédé sol-gel basse température.

## I.4. Objectifs de la thèse

Sur la base de la présentation précédente, il est désormais temps de donner les objectifs principaux des travaux de cette thèse. Tout d'abord, on présente les principaux matériaux susceptibles d'être utilisés dans l'intégration des composants à effet non-réciproque ainsi que le matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C. La qualité de ce dernier est évaluée par la détermination de son facteur de mérite. Ensuite, on souligne les applications éventuelles qui utilisent notre matériau magnéto-optique composite.

### I.4.1. Matériaux utilisés dans l'intégration des composants à effet non-réciproque

Le YIG et matériaux dérivés sont les principaux matériaux utilisés dans la fabrication des composants à effet non-réciproque. Cependant, l'intégration de ce type de matériaux se heurte à diverses difficultés technologiques. En effet, il est délicat de déposer du YIG sur des substrats type verre ou semi-conducteur à cause des différences de coefficient d'expansion thermique entre le YIG et le substrat, et de la forte valeur de température de recuit nécessaire (800°C) à la cristallisation du YIG. De ce fait, plusieurs matériaux ont été développés pour essayer d'éviter ces problèmes d'intégration. La qualité de ces matériaux est évaluée par la valeur du facteur de mérite.

Le tableau I.1 regroupe ainsi les principaux matériaux utilisés dans l'intégration des composants à effet non-réciproque. Il présente principalement les facteurs de mérite  $M$  (°/dB) de ces matériaux magnéto-optiques à la longueur d'onde d'utilisation  $\lambda$  (nm).

Matériau	Substrat	$\lambda$ (nm)	$M$ (°/dB)	Auteurs
GaAs:MnAs	GaAs	1540	0,018	Shimizu <i>et al</i> [67]
InAlAs:MnAs	InP	1550	0,06	Shimizu <i>et al</i> [68]
CdMnTe	GaAs	740	921	Zayets <i>et al</i> [69]
$\gamma\text{Fe}_2\text{O}_3$ NP	Verre	633	0,07 – 0,18	Royer <i>et al</i> [70]
Ce:YIG	GSGG	1550	340 (TE) – 570 (TM)	Shintaku <i>et al</i> [71]
Bi:YbIG/YIG	YIG	1550	44 (YIG) – 130 (Bi:YbIG)	Huang <i>et al</i> [72]
$\text{Co}_{50}\text{Fe}_{50}$	GaAs	1310	0,3	Lesuffleur <i>et al</i> [73]
Fe:InGaAsP	InP	1550	125	Zaman <i>et al</i> [74]
$\text{SrTiO}_3$ dopé Fe	$\text{LaAlO}_3$	1550	1,1	Kim <i>et al</i> [75]
$\text{Fe}_3\text{O}_4$ (NP)/PMMA	Polymère	980	0,5	Lopez-Santiago <i>et al</i> [76]
$\text{CoFe}_2\text{O}_4$ NP	Verre	1550	1,6-2,3	Choueikani <i>et al</i> [77]
$\text{CoFe}_2\text{O}_4$ NP	Verre	980	0,2	Lopez-Santiago <i>et al</i> [78]

Tableau I.1 : Principaux matériaux utilisés dans la réalisation des composants à effet non-réciproque. NP signifie nanoparticules.

Ce tableau montre que Zayets *et al* [69] ont obtenu la plus grande valeur du facteur de mérite en utilisant le CdMnTe déposé sur un substrat de GaAs. Pour une longueur d'onde d'utilisation qui correspond au domaine des télécommunications (vers 1550 nm), on constate que le Ce:YIG déposé sur un substrat de GSGG [71] présente également une valeur du facteur de mérite élevée, mais les difficultés d'intégration ont été exposées précédemment.

Ce tableau montre également que diverses pistes de recherche traitent du développement de nouveaux matériaux magnéto-optiques compatibles avec les technologies des semi-conducteurs. Néanmoins, aucune approche n'est développée en vue d'une intégration d'un matériau magnéto-optique avec les technologies d'optique intégrée sur verre. Cette dernière approche constitue depuis plusieurs années l'une des pistes de recherche du laboratoire LT2C.

#### I.4.2. Matériau magnéto-optique composite

Le procédé sol-gel constitue une méthode efficace pour la synthèse de matériaux magnéto-optiques composites à base de nanoparticules magnétiques [79]. De ce fait, dans notre laboratoire, divers matériaux magnéto-optiques ont été réalisés à partir d'une matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de maghémite ( $\gamma - \text{Fe}_2\text{O}_3$ ) ou de ferrite de cobalt ( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ) et leurs propriétés ont été caractérisées. Cette matrice de silice dopée est parfaitement compatible avec les technologies d'intégration sur verre vu qu'elle nécessite un traitement thermique à une température relativement basse de l'ordre de 100°C. La méthode de dopage consiste à insérer dans le sol, sous forme de ferrofluide, les nanoparticules magnétiques déjà cristallisées.

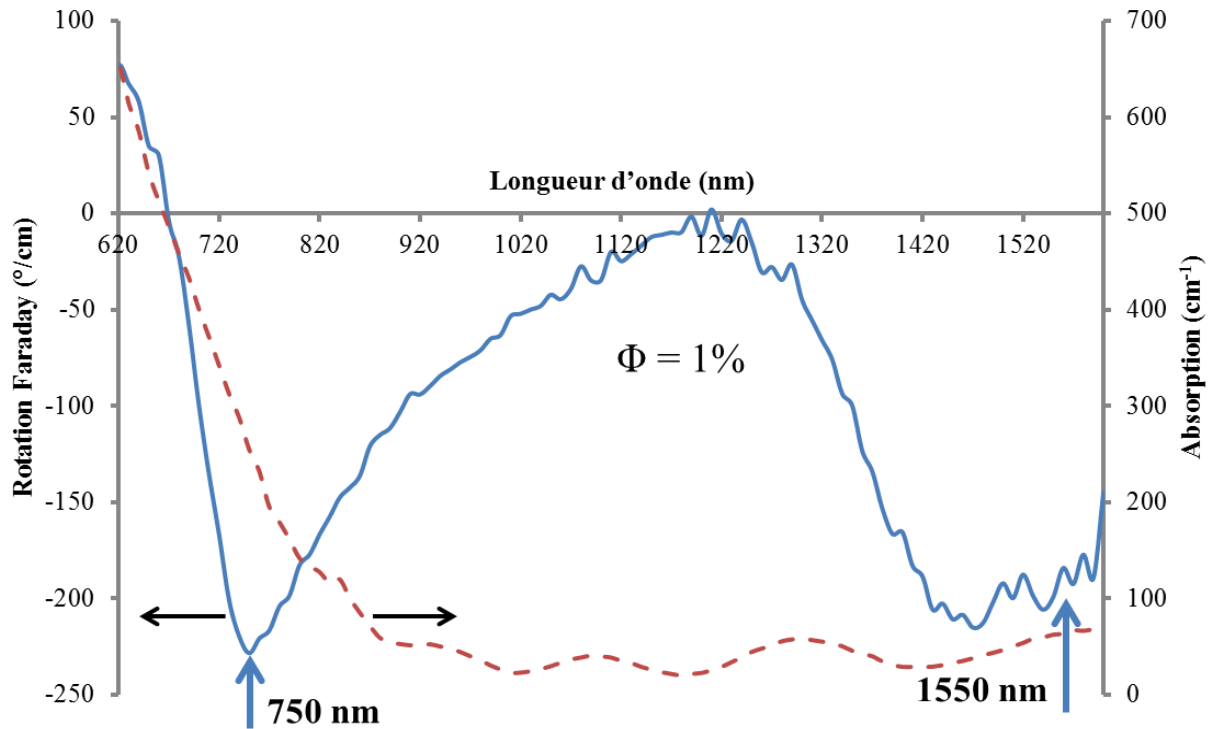


Figure I.26 : Rotation Faraday spécifique (°/cm) et absorption ( $\text{cm}^{-1}$ ) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une couche du matériau magnéto-optique de concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt  $\Phi = 1\%$ .

La figure I.26 représente la rotation Faraday spécifique  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm})$  ainsi que l'absorption  $\alpha(\text{cm}^{-1})$  en fonction de la longueur d'onde d'une couche du matériau magnéto-optique composite de concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt ( $\Phi$ ) de 1%. Conformément à la littérature [80], cette figure montre que la valeur de  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm})$  est maximale dans deux zones. La première zone atteint son maximum  $230^{\circ}/\text{cm}$  à la longueur d'onde de 750 nm tandis que la deuxième zone où  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm}) \approx 200^{\circ}/\text{cm}$  s'étend entre 1400 nm et 1600 nm. Cette deuxième zone correspond à la gamme des longueurs d'ondes utilisées dans le domaine des télécommunications (aux alentours de 1550 nm). Dans cette dernière, la valeur de  $\alpha(\text{cm}^{-1})$  est minimale. Vu la forte rotation Faraday dans la gamme des longueurs d'ondes utilisées dans le domaine des télécommunications, le choix des nanoparticules magnétiques utilisées pour l'élaboration du matériau magnéto-optique composite au laboratoire LT2C est fixé sur la ferrite de cobalt.

Malgré la forte valeur de  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm})$  à 1550 nm, l'utilisation du matériau magnéto-optique composite dans l'intégration des composants à effet non-réciproque nécessite que la valeur de son facteur de qualité soit également élevée. De ce fait, pour évaluer la qualité de notre matériau magnéto-optique composite, nous devons calculer son facteur de mérite M.

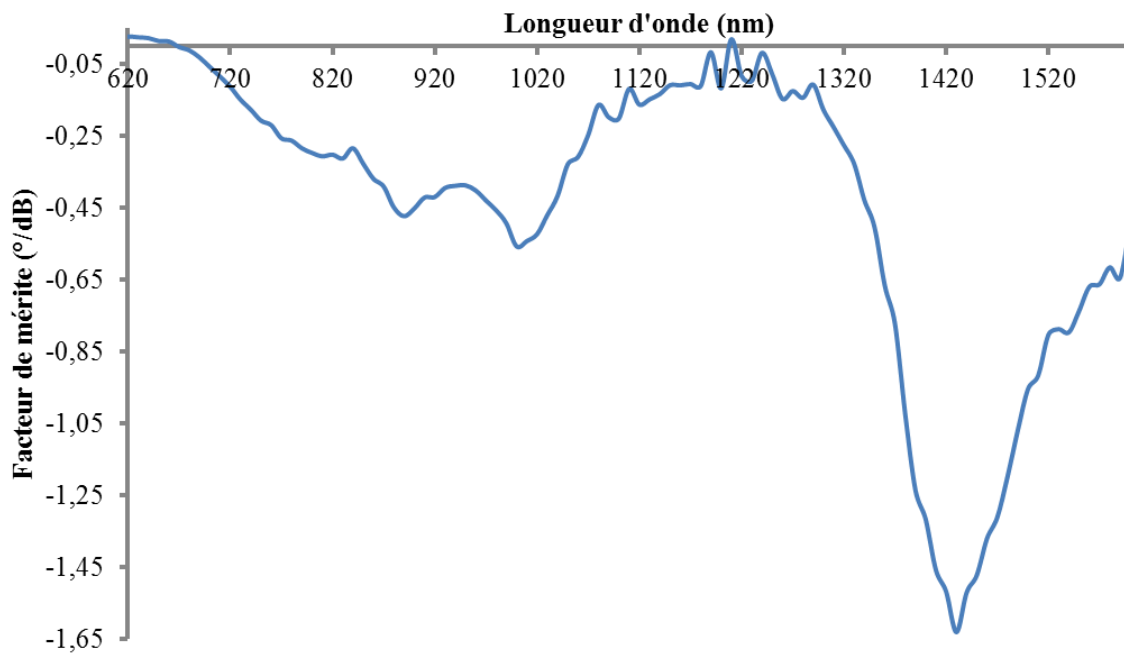


Figure I.27 : Facteur de mérite ( $^{\circ}/\text{dB}$ ) en fonction de la longueur d'onde (nm).

La figure I.27 représente le facteur de mérite de notre matériau magnéto-optique composite en fonction de la longueur d'onde. Ce facteur de mérite est tracé en utilisant les valeurs de  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm})$  et  $\alpha(\text{cm}^{-1})$  représentées dans la figure I.26. Sachant que  $\theta_F(^{\circ}/\text{cm})$  et  $\alpha(\text{cm}^{-1})$  sont proportionnelles à la concentration en nanoparticules magnétiques, le facteur de mérite est indépendant de cette valeur. Cette figure montre que la valeur de M atteint son maximum  $1,6^{\circ}/\text{dB}$  à la longueur d'onde de 1430 nm. En comparant ce résultat avec ceux du tableau I.1, nous constatons que notre matériau magnéto-optique composite possède un facteur de mérite de valeur moyenne. Par contre il est le meilleur obtenu avec une approche composite.

Néanmoins, cette valeur de  $M$  n'est pas suffisante pour l'utilisation du matériau magnéto-optique composite dans l'intégration de certains composants.

Ces propriétés intéressantes ont permis au laboratoire LT2C, en collaboration avec le laboratoire IMEP-LAHC de Grenoble, de concilier les avantages des guides réalisés par échange d'ions sur verre avec ceux des couches minces composites et cela en déposant une couche magnéto-optique guidante sur un guide passif réalisé par échange d'ions. La figure I.28 montre une représentation schématique du principe de cette structure hybride. Les résultats montrent que cette structure peut être utilisée comme un guide d'onde [81], avec une rotation de polarisation qui peut atteindre  $45^\circ$ . Ceci montre la capacité d'intégration des couches composites dans les circuits photoniques avec une réelle efficacité.

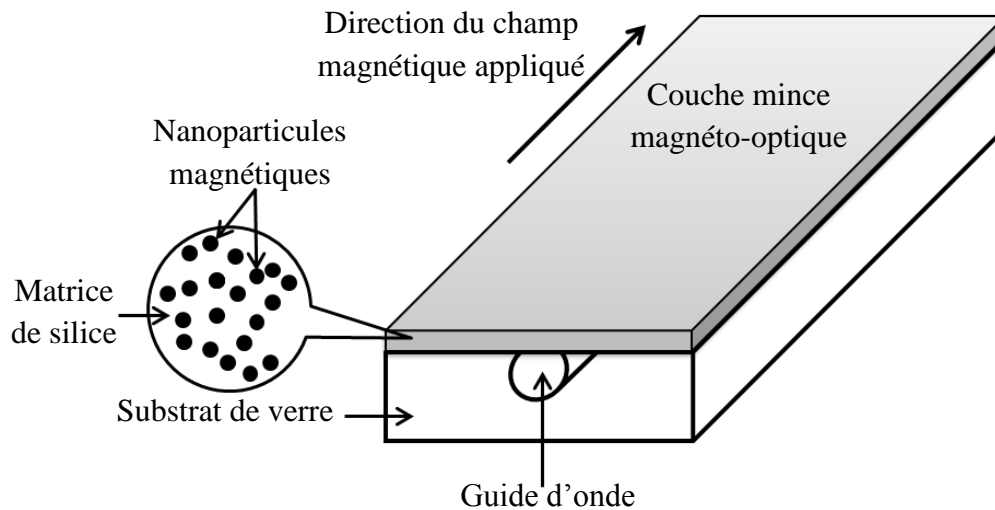


Figure I.28 : Représentation schématique du principe de la structure hybride composée d'un guide réalisé par échange d'ions et d'une couche magnéto-optique.

Ainsi, ce matériau magnéto-optique apparaît comme un candidat intéressant pour l'intégration des isolateurs optiques [82]. En effet, la non-réciprocité de la rotation Faraday est à la base de la réalisation de ce type de composant intégré. La figure I.29 représente le principe de fonctionnement d'un isolateur optique intégré à rotation. Ce dernier est formé d'un polariseur, d'une section non-réciproque (rotateur à effet Faraday d'un angle égale à  $45^\circ$ ) obtenue par application d'un champ magnétique  $\vec{H}$  longitudinal et d'une section réciproque (lame demi-onde) inclinée à  $22,5^\circ$  du plan. Dans le sens aller, la direction de l'onde lumineuse incidente est inchangée. En revanche, dans le sens retour, l'onde lumineuse réfléchie se trouve perpendiculaire à la direction du polariseur et elle est bloquée. L'absorption  $\alpha$ , généralement dû au matériau magnétique, est un facteur important influant l'efficacité de ce composant. En général, la perte d'insertion doit être inférieure à 1 dB. En conséquence, une valeur de  $M$  de l'ordre de  $45^\circ/\text{dB}$  est nécessaire pour une intégration efficace des isolateurs optiques.

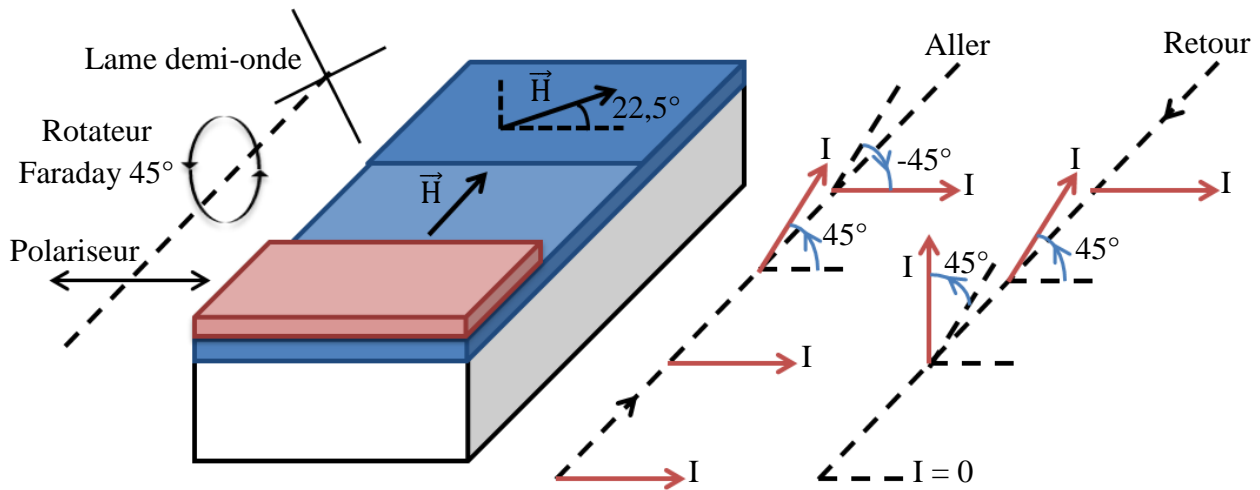


Figure I.29 : Principe de fonctionnement d'un isolateur optique intégré à rotation.

De ce qui précède, on peut conclure que l'approche composite, développée au sein du laboratoire LT2C, est prometteuse pour l'intégration et la conversion de polarisation. Par contre, la qualité actuelle du matériau magnéto-optique composite (de l'ordre de  $2^\circ/\text{dB}$ ) n'est pas suffisante pour son utilisation dans l'intégration de certains composants, comme l'isolateur optique intégré par exemple qui nécessite  $45^\circ/\text{dB}$ . De ce fait, dans le but d'améliorer les effets Faraday, notamment exalter la valeur de la rotation Faraday ainsi que la valeur du facteur de mérite, le laboratoire LT2C s'oriente vers la structuration du matériau magnéto-optique composite en adaptant une approche basée sur les cristaux magnéto-photoniques 3D. En effet, en se basant sur les travaux détaillés dans le paragraphe I.3.1.3 où une exaltation des effets Faraday est reportée, la structuration 3D de notre matériau magnéto-optique composite nous paraît une solution intéressante pour améliorer sa qualité.

### I.4.3. Structuration 3D du matériau magnéto-optique composite

Le laboratoire LT2C utilise un procédé sol-gel basse température pour développer un matériau magnéto-optique composite parfaitement compatible avec les technologies d'intégration sur verre. Ce matériau est élaboré à base de nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt ( $\approx 10 \text{ nm}$ ) encapsulées dans une matrice de silice. La caractérisation magnéto-optique d'une couche de ce matériau ( $\Phi = 1\%$ ) montre une rotation Faraday spécifique d'environ  $200^\circ/\text{cm}$  aux alentours de  $1550 \text{ nm}$ . Dans le but d'exalter les valeurs des effets Faraday et du facteur de mérite du matériau magnéto-optique composite, le laboratoire LT2C s'oriente vers sa structuration. Une approche peu coûteuse et facile à mettre en œuvre est choisie. Elle consiste à élaborer via la technique du dépôt vertical une opale directe par auto-arrangement des microbilles de polystyrène sur un substrat de verre. En utilisant un procédé sol-gel basse température, les pores de l'opale sont infiltrés par le matériau magnéto-optique composite. Après un traitement thermique adéquat, le polystyrène est dissout dans l'acétate d'éthyle. La structure résultante est un cristal magnéto-photonique 3D formé de trous d'air dans une matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt. La transmittance de ce cristal présente des bandes interdites photoniques. La position de ces dernières est contrôlée en modifiant la taille des microbilles de polystyrène. L'intérêt de la

BIP se résume au fait qu'en ses bords la vitesse de groupe des ondes électromagnétiques est faible. On note qu'un ralentissement de la vitesse de groupe des ondes électromagnétiques se traduit par un renforcement de l'interaction entre l'onde et la matière. De ce fait, une exaltation de la valeur des effets Faraday est prévue en bords de la BIP.

Ces travaux de thèse sont une continuité de ceux effectués précédemment au laboratoire LT2C sur les cristaux magnéto-photoniques 3D et les composites magnéto-optiques. Renata Kékesi, auteure d'une thèse soutenue en 2011 « Étude expérimentale de cristaux magnéto-photoniques 3D réalisés sous forme d'opales inversés par une matrice de silice dopée en nanoparticules magnétiques », a mis en œuvre lors de ses travaux la procédure d'élaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D utilisée au sein du laboratoire LT2C. Elle a ainsi obtenu des BIP dans des opales dopées et mis en évidence l'activité magnéto-optique de ces structures [83]. En s'appuyant sur ces résultats, les objectifs principaux des travaux de cette thèse consistent tout d'abord à optimiser au mieux la procédure d'élaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D afin d'améliorer la qualité structurelle et magnéto-optique des opales. Ensuite, ils consistent à réaliser une étude systématique des effets magnéto-optiques dans ces structures 3D pour investiguer le comportement spectral de l'effet Faraday (rotation et ellipticité), puis qualifier les modifications apportées au facteur de mérite.

La figure I.30 montre une représentation schématique qui résume l'approche choisie pour la structuration 3D de notre matériau magnéto-optique composite.

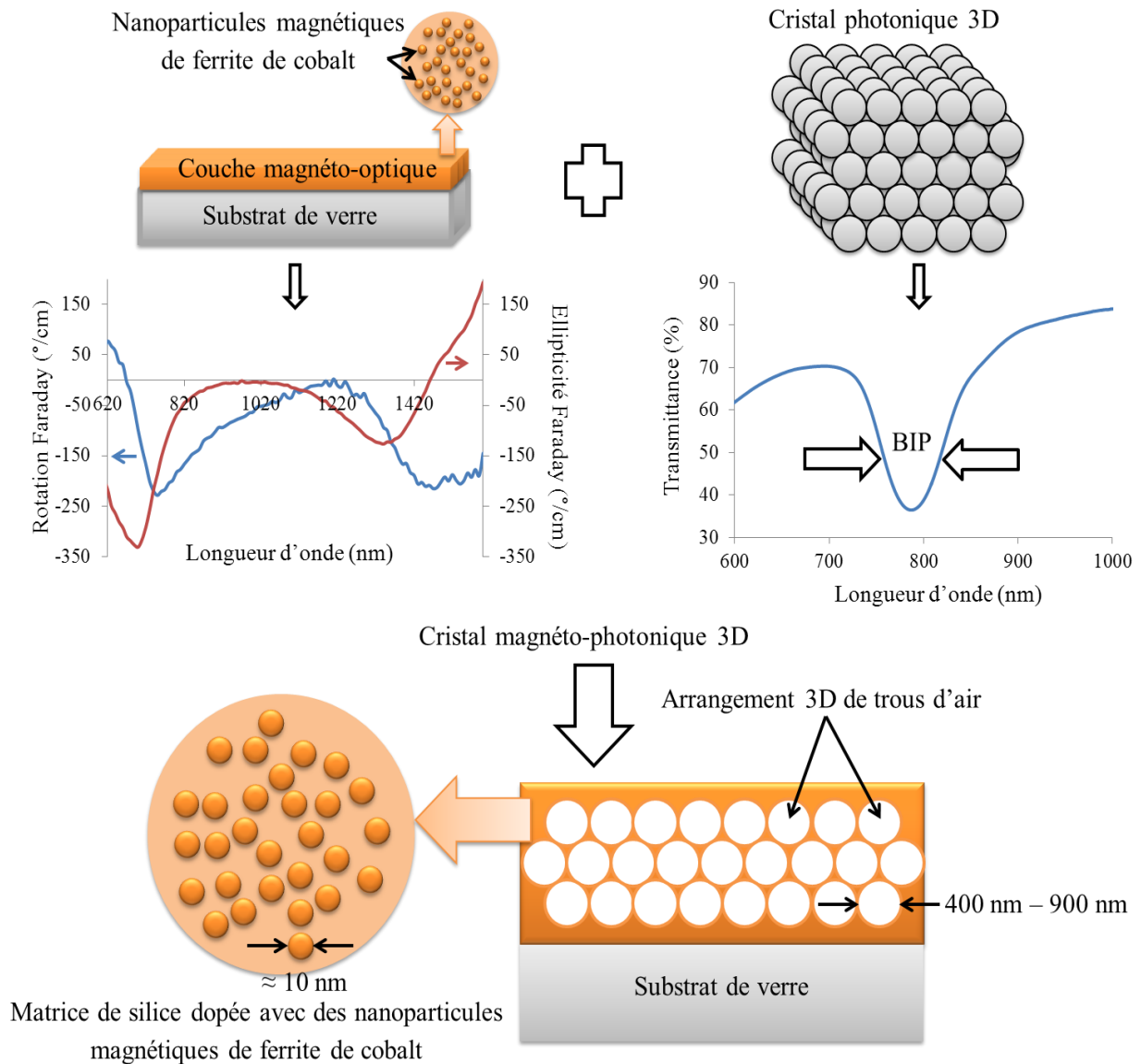


Figure I.30 : Résumé de l'approche choisie pour la structuration 3D du matériau magnéto-optique composite.

En haut à gauche de la figure I.30 on représente le comportement spectral de la rotation et de l'ellipticité Faraday d'une couche de notre matériau magnéto-optique composite ( $\Phi = 1\%$ ). A droite, on représente la transmittance en fonction de la longueur d'onde d'une opale. Cette dernière souligne la présence d'une BIP. Le couplage entre le cristal photonique 3D et la couche magnéto-optique conduit à la réalisation d'un cristal magnéto-photonique 3D formé de trous d'air dans une matrice de silice dopée avec des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt. Cette structuration 3D de notre matériau magnéto-optique est censée exalter l'effet Faraday en bords de la BIP.

## I.5. Conclusion

Ce chapitre a détaillé l'état de l'art des structures magnéto-optiques périodiques ainsi que le contexte scientifique des travaux de cette thèse. La première partie a présenté un aperçu général sur les cristaux photoniques dans la littérature. On retiendra que la technique du dépôt vertical est une technique qui permet d'élaborer des opales directes de bonne qualité structurale et optique. Ces structures 3D peuvent être fabriquées par l'auto-arrangement des microbilles de polystyrène sur un substrat de verre. De plus, un procédé sol-gel basse température et facile à mettre en œuvre peut être utilisé pour infiltrer les pores des opales directes par une solution à base de précurseurs comme l'orthosilicate de tétraéthyle. On note qu'un tel procédé est également utilisé au laboratoire LT2C pour élaborer un matériau magnéto-optique composite à base de nanoparticules magnétiques encapsulées dans une matrice de silice. Après un traitement adéquat, les microbilles de polystyrène peuvent être éliminées par l'acétate d'éthyle. Ainsi, on obtient des opales inverses. Cette partie a également présenté les guides d'ondes, les OLED et les fibres à cristal photonique ou « holey fibers » qui intègrent dans leurs structures des cristaux photoniques.

La troisième partie a présenté un aperçu général sur les cristaux magnéto-photoniques. On retiendra de la littérature que la structuration périodique 1D permet d'exalter la valeur de la rotation Faraday et du facteur de mérite en bords et intérieur de la BIP. Cette exaltation est également possible en utilisant une structuration périodique 2D. Quant à la structuration périodique 3D, elle est susceptible soit d'exalter soit surtout de modifier le comportement spectral des effets magnéto-optiques en bords ou au centre de la BIP. Ces dernières modifications sont clairement observables dans certains travaux tandis qu'elles ne le sont pas forcément dans d'autres. On conclut qu'en utilisant les cristaux magnéto-photoniques 3D, l'exaltation de la valeur des effets magnéto-optiques n'est pas évidente comme dans le cas des cristaux magnéto-photoniques 1D et 2D. Cette partie a également présenté les guides d'ondes et les circulateurs qui intègrent dans leurs structures des cristaux magnéto-photoniques.

La quatrième partie a présenté les objectifs principaux des travaux de cette thèse. En résumé, le matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C est parfaitement compatible avec les technologies d'intégration sur verre. Néanmoins, sa qualité actuelle n'est pas suffisante pour l'utiliser dans l'intégration de certains composants à effet non-réciproque. En effet, son facteur de mérite est de l'ordre de  $2^\circ/\text{dB}$  tandis que par exemple l'isolateur optique intégré nécessite un facteur de mérite de  $45^\circ/\text{dB}$ . En se basant sur l'état de l'art des cristaux magnéto-photoniques qu'on a détaillé dans ce chapitre, notamment la possibilité d'exalter la valeur des effets magnéto-optiques et du facteur de mérite en bords de la BIP dans les cristaux magnéto-photoniques 1D, le laboratoire LT2C s'est orienté vers la structuration du matériau magnéto-optique composite. Dans ce contexte, ces travaux de thèse constituent une continuité des travaux sur la structuration 3D du matériau. Ils consistent tout d'abord à optimiser au mieux la procédure d'élaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D afin d'améliorer la qualité structurale et magnéto-optique des opales. Ensuite, ils consistent à réaliser une étude systématique de l'effet Faraday dans ces structures 3D. Ces travaux consistent finalement à qualifier la modification apportée au facteur de mérite.



Pour atteindre nos objectifs, on a divisé les travaux de cette thèse selon les étapes suivantes :

- la première étape consiste à vérifier par une étude théorique qui traite de l'effet Faraday et du facteur de mérite, que la structuration du matériau magnéto-optique composite conduit à son comportement comme un cristal magnéto-photonique. Cette étape est traitée dans le deuxième chapitre ;
- la deuxième étape consiste à modifier l'approche d'élaboration des opales inverses dopées dans le but d'améliorer leur qualité structurelle et magnéto-optique. Cette étape est traitée dans le troisième chapitre ;
- l'étape suivante consiste à réaliser la caractérisation structurelle, optique et magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 3D. Cette étape est traitée dans le troisième et le quatrième chapitre ;
- la dernière étape consiste à étudier systématiquement l'effet Faraday dans les opales inverses dopées. Il faut finalement qualifier la modification apportée au facteur de mérite. Cette étape est traitée dans le quatrième chapitre.

---

## II. Structures périodiques : étude comportementale et magnéto-optique

---

Ce chapitre traite des propriétés générales des cristaux photoniques et magnéto-photoniques en s'intéressant plus particulièrement à l'influence d'un arrangement périodique sur les propriétés magnéto-optiques d'une structure. Il est divisé en quatre parties principales et une conclusion qui résume son contenu.

La première partie présente tout d'abord la constitution de la structure CFC en définissant sa structure cristalline et en détaillant les notions de réseau réciproque et zone de Brillouin.

La deuxième partie est consacrée aux spécificités de la propagation de la lumière dans un cristal photonique notamment l'introduction de la notion de modes de Bloch. L'analyse permet ensuite d'aboutir à la relation de dispersion d'un cristal photonique 3D qui présente une BIP.

La troisième partie traite tout d'abord de la détermination de la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D. Ensuite, celle d'un cristal magnéto-photonique 1D, est obtenue en soulignant l'effet de la structuration sur la rotation Faraday. L'approche matricielle utilisée lors de ces calculs est détaillée au début de cette partie.

La dernière partie concerne des simulations faites sur différentes structures 1D en utilisant l'approche matricielle. Le but est de comparer les facteurs de mérite des structures afin de vérifier qu'une augmentation de ce facteur est possible en procédant à la structuration du matériau.

### II.1. Structure cubique à faces centrées

Pour les cristaux photoniques, en raison de la périodicité, la propagation de la lumière obéit à des règles spécifiques. Il est donc nécessaire d'utiliser un formalisme adapté afin de comprendre et d'interpréter la propagation des ondes à l'intérieur de ce type de structures. Cette première partie présente tout d'abord la constitution de la structure CFC en définissant sa structure cristalline et en détaillant les notions de réseau réciproque et zone de Brillouin.

#### II.1.1. Structure cristalline

Dans une structure cristalline, les positions atomiques sont distribuées de manière périodique. En effet, pour tout atome A occupant une position  $\vec{r}$ , les trois vecteurs de base du réseau  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$ , linéairement indépendants, sont tels que l'on trouve un atome A à l'extrémité de chaque vecteur de la forme  $m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2 + m_3\vec{a}_3$  ( $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$  sont des entiers positifs négatifs ou nuls) tracé à partir de la position  $\vec{r}$ . L'ensemble des vecteurs  $\vec{R} = m_1\vec{a}_1 + m_2\vec{a}_2 + m_3\vec{a}_3$  forme le réseau de Bravais du cristal. De plus, l'ensemble des

extrémités des vecteurs  $\vec{R}$  forment les nœuds du réseau de Bravais du cristal. Un réseau de Bravais est représenté graphiquement par ses nœuds. Les paramètres cristallins sont constitués des longueurs  $\|\vec{a}_1\|$ ,  $\|\vec{a}_2\|$  et  $\|\vec{a}_3\|$  et des angles entre les vecteurs de base du réseau.

La permittivité  $\varepsilon(\vec{r})$  et l'imperméabilité  $\eta(\vec{r}) = \varepsilon_0 / \varepsilon(\vec{r})$  sont invariantes pour une translation par le vecteur  $\vec{R}$  :

$$\eta(\vec{r} + \vec{R}) = \eta(\vec{r}) \quad \text{Equation II. 1}$$

Ainsi, ces fonctions périodiques peuvent être représentées en série de Fourier 3D [27] :

$$\eta(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} \eta_{\vec{G}} \exp(-j\vec{G}\vec{r}) \quad \text{Equation II. 2}$$

Avec  $\vec{G} = l_1\vec{g}_1 + l_2\vec{g}_2 + l_3\vec{g}_3$  un vecteur formé par les trois vecteurs de base  $\vec{g}_1$ ,  $\vec{g}_2$  et  $\vec{g}_3$  du réseau réciproque du réseau de Bravais et  $l_1$ ,  $l_2$  et  $l_3$  sont des entiers positifs négatifs ou nuls. Les vecteurs  $\vec{g}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) sont reliés aux vecteurs  $\vec{a}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ) par :

$$\begin{aligned} \vec{g}_1 &= 2\pi \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \\ \vec{g}_2 &= 2\pi \frac{\vec{a}_3 \times \vec{a}_1}{\vec{a}_2 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \\ \vec{g}_3 &= 2\pi \frac{\vec{a}_1 \times \vec{a}_2}{\vec{a}_3 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \end{aligned} \quad \text{Equation II. 3}$$

Ces vecteurs sont tel que :  $\vec{g}_1 \cdot \vec{a}_1 = 2\pi$ ,  $\vec{g}_1 \cdot \vec{a}_2 = 0$  et  $\vec{g}_1 \cdot \vec{a}_3 = 0$ , ce qui donne  $\vec{g}_1$  orthogonal à  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  et son amplitude est inversement proportionnelle à  $\vec{a}_1$ . Ces mêmes propriétés s'appliquent sur  $\vec{g}_2$  et  $\vec{g}_3$ . De même  $\vec{G} \cdot \vec{R} = 2\pi$ .

Si  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  sont mutuellement orthogonaux, alors  $\vec{g}_1$ ,  $\vec{g}_2$  et  $\vec{g}_3$  le sont aussi et les amplitudes  $g_1 = 2\pi/a_1$ ,  $g_2 = 2\pi/a_2$  et  $g_3 = 2\pi/a_3$  sont les fréquences spatiales associées respectivement à la périodicité suivant les trois directions.

### II.1.2. Définition de la structure cubique à faces centrées

Dans une structure CFC, les éléments formant la structure se placent sur les coins et au centre des faces d'un cube. C'est ce type d'organisation que l'on retrouve dans les opales de microbilles présentées au chapitre 1 et que nous avons étudié au cours de ce travail. La figure II.1 montre une représentation schématique de l'organisation des éléments dans ce type de structure.

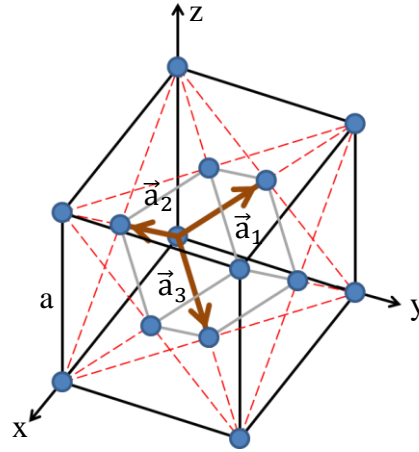


Figure II.1 : Représentation schématique de l'organisation des éléments dans une structure CFC.

Les vecteurs  $\vec{a}_1$ ,  $\vec{a}_2$  et  $\vec{a}_3$  forment les trois vecteurs de la maille primitive du réseau CFC, et s'écrivent :

$$\vec{a}_1 = \frac{a}{2} (\hat{y} + \hat{z})$$

$$\vec{a}_2 = \frac{a}{2} (\hat{x} + \hat{z})$$

$$\vec{a}_3 = \frac{a}{2} (\hat{x} + \hat{y})$$

Equation II. 4

Où  $a$  est le paramètre de maille,  $\hat{x}$ ,  $\hat{y}$  et  $\hat{z}$  sont des vecteurs unitaires respectivement suivant  $x$ ,  $y$  et  $z$ .

La figure II.2 montre la maille primitive dans l'espace réciproque du réseau cristallin CFC de la figure II.1.

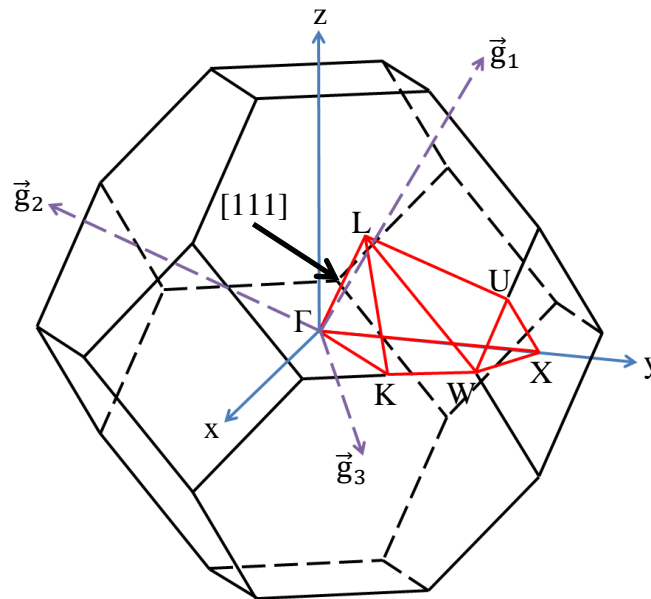


Figure II.2 : Représentation schématique de la maille primitive dans l'espace réciproque du réseau cristallin CFC de la figure II.1.

Les vecteurs de la maille réciproque sont définis par les relations :

$$\begin{aligned}\vec{g}_1 &= \frac{2\pi}{a}(-\hat{x} + \hat{y} + \hat{z}) \\ \vec{g}_2 &= \frac{2\pi}{a}(\hat{x} - \hat{y} + \hat{z}) \\ \vec{g}_3 &= \frac{2\pi}{a}(\hat{x} + \hat{y} - \hat{z})\end{aligned}\quad \text{Equation II. 5}$$

Cette maille, appelée première zone de Brillouin, est un octaèdre tronqué de centre  $\Gamma$ . L'importance de la première zone de Brillouin provient de la description en ondes de Bloch des ondes dans un milieu périodique, dans lequel il est démontré que les solutions peuvent être complètement caractérisées par leur comportement dans cette zone. Les symétries de la maille permettent de réduire le volume de la zone de Brillouin au polyèdre dont les sommets sont marqués par les symboles cristallographiques  $\Gamma XULKW$ .

Dans une opale directe, les éléments qui forment le réseau sont des microbilles au contact. La croissance cristalline se fait suivant les plans compacts de la structure CFC, ce sont des plans (111) où (hkl) sont les indices de Miller (figure II.3.a). La figure II.3.b représente une illustration schématique d'une croissance cristalline dans une direction perpendiculaire au plan (111). On obtient ainsi expérimentalement une structure du type de celle présentée sur l'image MEB de la figure II.3.c, prise de la référence [84].

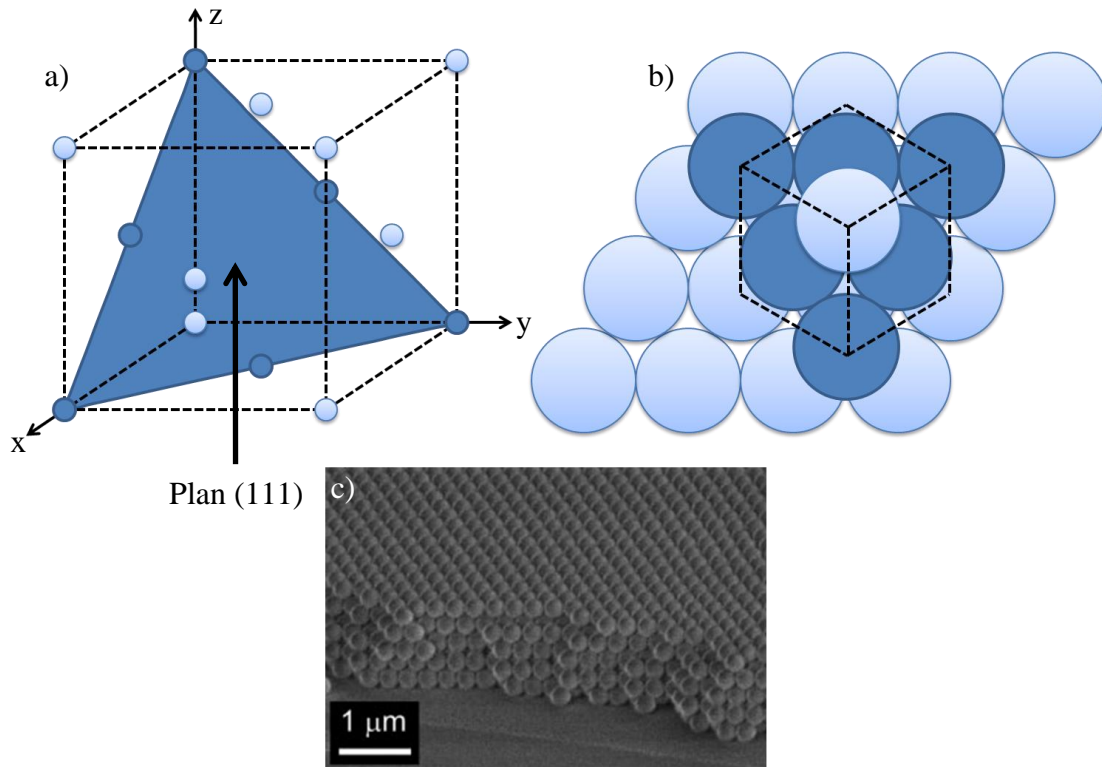


Figure II.3 : a) Représentation schématique du plan (111) du réseau CFC, b) illustration schématique d'une croissance cristalline suivant une direction perpendiculaire au plan (111), c) image MEB d'une opale directe où les microbilles, au contact, sont organisées en une structure CFC [84].

La figure II.4.a permet de calculer le paramètre de maille  $a$  en fonction du diamètre des microbilles  $D_{\text{sph}}$ . Ce dernier s'écrit :

$$a = \sqrt{2}D_{\text{sph}} \quad \text{Equation II. 6}$$

On peut calculer alors la proportion d'espace occupée par les microbilles de l'opale directe comme suit :

$$\frac{\text{Volume}_{\text{occupé}}}{\text{Volume}_{\text{total}}} = \frac{4\text{Volume}_{\text{sph}}}{a^3} = \frac{4\left(\frac{4}{3}\pi\left(\frac{D_{\text{sph}}}{2}\right)^3\right)}{(\sqrt{2}D_{\text{sph}})^3} = \frac{\pi\sqrt{2}}{6} \approx 0,74 \quad \text{Equation II. 7}$$

Il s'agit donc d'un assemblage compact où les microbilles se touchent. Chaque microbille est entourée de 12 plus proches voisins. En effet, dans un plan A, l'empilement le plus compact possible est obtenu lorsque les microbilles sont tangentes. Leurs centres forment des triangles équilatéraux de côté  $a = D_{\text{sph}}$ . Une microbille a alors 6 voisins (figure II.4.b). Au-dessus comme au-dessous du plan A, une seule solution possible, un plan B, dans lequel chaque microbille est au contact de trois microbilles du plan A. Les microbilles du plan B sont localisées à la verticale des barycentres des triangles équilatéraux qui décrivent le plan A (figure II.4.c). Enfin, au-dessus du plan B, on occupe les positions à la verticale des centres du plan A non occupés par le plan B (figure II.4.d). De ce fait, on parle d'empilement ABCABC...

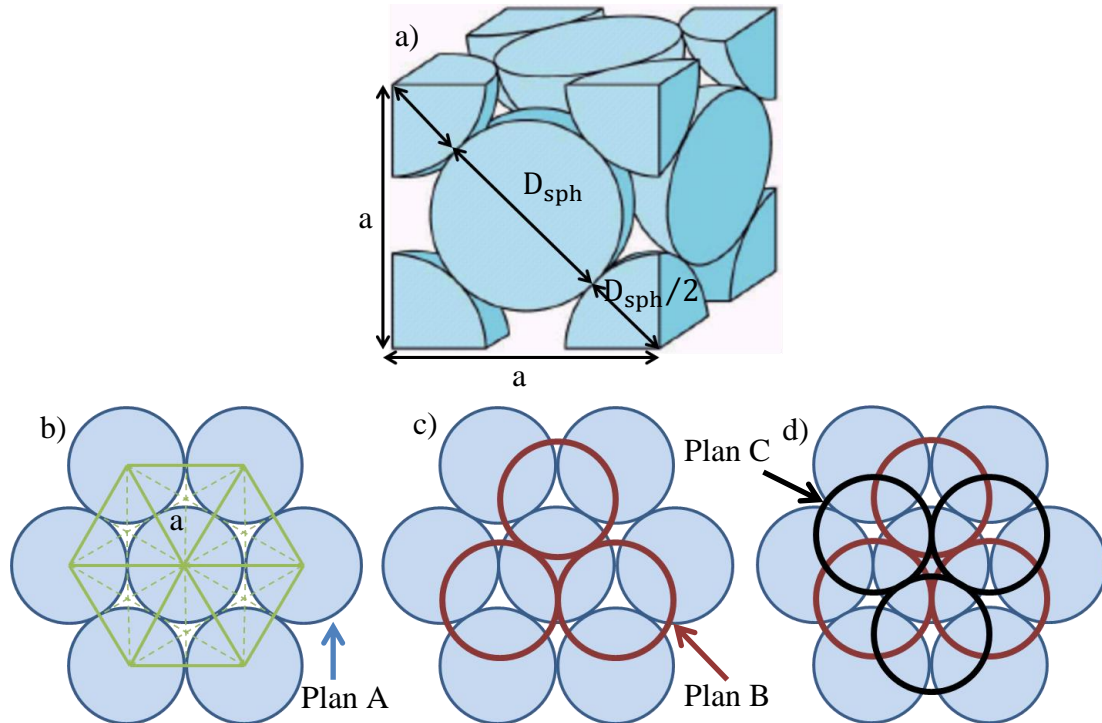


Figure II.4 : a) Calcul du paramètre de maille  $a$  en fonction du diamètre des microbilles de l'opale directe, b) vue de dessus d'un empilement de microbilles le plus compact possible : chaque microbille est entourée de 6 plus proches voisins, c) vue de dessus du positionnement des microbilles du plan B par rapport au plan A, d) vue de dessus du positionnement des microbilles du plan C par rapport aux plans A et B.

Dans cette première partie, la constitution de la structure CFC est présentée, tout d'abord en définissant sa structure cristalline et ensuite en détaillant les notions de réseau réciproque et zone de Brillouin. Ces notions nous seront utiles afin de déterminer les relations de dispersion des cristaux photoniques et magnéto-photoniques.

## II.2. Relation de dispersion d'un cristal photonique 3D

Une relation de dispersion est une relation entre la fréquence angulaire  $\omega(K)$  et le vecteur d'onde  $\vec{K}$ . Elle permet de définir comment se propagent les ondes à l'intérieur d'un cristal photonique. Dans cette deuxième partie, la détermination de la relation de dispersion d'un cristal photonique 3D est traitée en partant des équations de Maxwell.

### II.2.1. Propagation de la lumière dans les cristaux photoniques : Equation de Helmholtz

La propagation de la lumière dans les cristaux photoniques est régie par les équations de Maxwell. En supposant que les charges ponctuelles et/ou leurs courants électriques microscopiques associés si ces charges sont en mouvement, sont nuls on obtient [85, 86] :

$$\begin{aligned}\nabla \vec{D}(\vec{r}, t) &= 0 \\ \nabla \vec{B}(\vec{r}, t) &= 0 \\ \nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r}, t) \\ \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) &= \frac{\partial}{\partial t} \vec{D}(\vec{r}, t)\end{aligned}\quad \text{Equation II. 8}$$

Où  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  est le vecteur champ électrique,  $\vec{B}(\vec{r}, t)$  est le vecteur induction magnétique,  $\vec{D}(\vec{r}, t)$  est le vecteur induction électrique et  $\vec{H}(\vec{r}, t)$  est le vecteur champ magnétique.

Aux fréquences optiques, la perméabilité magnétique est égale à la perméabilité du vide,  $\mu_0$ .

$\vec{E}(\vec{r}, t)$  et  $\vec{H}(\vec{r}, t)$  dépendent simultanément du temps ainsi que de la position spatiale. Sachant que les équations de Maxwell sont linéaires, ces champs peuvent être décomposés en un ensemble d'harmoniques, ce qui permet d'appliquer l'analyse de Fourier :

$$\begin{aligned}\vec{H}(\vec{r}, t) &= \vec{H}(\vec{r}) \exp(-j\omega t) \\ \vec{E}(\vec{r}, t) &= \vec{E}(\vec{r}) \exp(-j\omega t)\end{aligned}\quad \text{Equation II. 9}$$

En reportant les équations II.9 dans les équations II.8 on obtient :

$$\begin{aligned}\nabla \times \vec{E}(\vec{r}) &= j\omega\mu_0 \vec{H}(\vec{r}) \\ \frac{1}{\epsilon_r(\vec{r})} [\nabla \times \vec{H}(\vec{r})] &= -j\omega\epsilon_0 \vec{E}(\vec{r})\end{aligned}\quad \text{Equation II. 10}$$

En appliquant une rotation sur les deux membres de l'équation II.10 et en remplaçant  $\nabla \times \vec{E}(\vec{r})$  par sa valeur on obtient l'équation de Helmholtz pour le champ magnétique :

$$\nabla \times \left[ \frac{1}{\epsilon_r(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}) \right] = \left( \frac{\omega}{c_0} \right)^2 \vec{H}(\vec{r}) \quad \text{Equation II. 11}$$

Avec  $c_0 = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$ , vitesse de la lumière dans le vide.

La résolution de l'équation de Helmholtz pour le champ magnétique (Equation II.11) conduit à la détermination de la relation de dispersion  $\omega - \vec{K}$  qui permet d'analyser la propagation de la lumière dans un cristal photonique.

### II.2.2. Modes de Bloch

Les modes d'un milieu périodique 3D sont les ondes invariantes pour une translation par le vecteur de réseau  $\vec{R}$ . Le théorème de Bloch [27] dit que ces fonctions d'onde, dites modes de Bloch, sont de la forme :

$$H(\vec{r}) = p_k(\vec{r}) \exp(j\vec{K} \cdot \vec{r}) \vec{e} \quad \text{Equation II. 12}$$

Avec  $p_k(\vec{r})$  une fonction périodique 3D dont la périodicité est décrite par le même vecteur de réseau  $\vec{R}$  et  $\vec{K}$  est le vecteur d'onde d'un état de Bloch. De ce fait, le mode de Bloch est une onde plane  $\exp(j\vec{K} \cdot \vec{r})$  modulée par une fonction périodique  $p_k(\vec{r})$ .

Une translation par le vecteur  $\vec{R}$  résulte en une multiplication par un facteur de phase  $\exp(j\vec{K} \cdot \vec{R})$  qui dépende de  $\vec{K}$ .

Deux modes ayant respectivement  $\vec{K}$  et  $\vec{K}' = \vec{K} + \vec{G}$  comme vecteurs d'onde de Bloch sont équivalents. En effet,  $\exp(j\vec{K}' \cdot \vec{R}) = \exp(j\vec{K} \cdot \vec{R})$  car  $\exp(j\vec{G} \cdot \vec{R}) = \exp(j2\pi) = 1$ . Par conséquent, pour une spécification complète des modes de Bloch, il suffit de considérer les valeurs de  $\vec{K}$  dans un volume fini du réseau réciproque : la première zone de Brillouin  $\Gamma X U L K W$  (figure II.2).

### II.2.3. Relation de dispersion d'un cristal photonique 3D

Afin de déterminer la relation de dispersion  $\omega - \vec{K}$  pour une structure périodique 3D [27], il faut déterminer l'ensemble des vecteurs d'ondes des états de Bloch  $\vec{K}$  en résolvant l'équation de Helmholtz :

$$\nabla \times [\eta(\vec{r}) \nabla \times \vec{H}] = \frac{\omega^2}{c_0^2} \vec{H} \quad \text{Equation II. 13}$$

Pour résoudre cette équation dans le milieu périodique, le principe consiste à utiliser la représentation en série de Fourier des fonctions  $\eta(\vec{r})$  et  $p_k(\vec{r})$ , pour aboutir à un ensemble d'équations algébriques résolues par recherche de valeurs propres matricielles.



En effet,  $\eta(\vec{r})$  étant une fonction périodique, sa représentation en série de Fourier 3D prend la forme définie dans l'équation II.2.

De même, la représentation en série de Fourier 3D de  $p_k(\vec{r})$  prend la forme suivante :

$$p_k(\vec{r}) = \sum_{\vec{G}} C_{\vec{G}} \exp(-j\vec{G} \cdot \vec{r}) \quad \text{Equation II. 14}$$

Le champ magnétique  $H(\vec{r})$  représenté en mode de Bloch devient donc :

$$H(\vec{r}) = p_k(\vec{r}) \exp(-j\vec{K}\vec{r}) \hat{e} = \sum_{\vec{G}} C_{\vec{G}} \exp[-j(\vec{K} + \vec{G}) \cdot \vec{r}] \hat{e} \quad \text{Equation II. 15}$$

Avec  $\hat{e}$  un vecteur unitaire dans la direction de polarisation.

Le remplacement des équations II.2 et II.15 dans l'équation II.13 donne :

$$-\sum_{\vec{G}'} (\vec{K} + \vec{G}) \times [(\vec{K} + \vec{G}') \times \hat{e}] \eta_{\vec{G}-\vec{G}'} C_{\vec{G}'} = \frac{\omega^2}{c_0^2} C_{\vec{G}} \hat{e} \quad \text{Equation II. 16}$$

Le produit scalaire avec  $\hat{e}$  de chaque côté et l'utilisation de l'identité vectorielle  $\vec{A}(\vec{B} \times \vec{C}) = -(\vec{B} \times \vec{A})\vec{C}$  donnent :

$$\sum_{\vec{G}'} F_{\vec{G}\vec{G}'} C_{\vec{G}'} = \frac{\omega^2}{c_0^2} C_{\vec{G}} \text{ avec } F_{\vec{G}\vec{G}'} = [(\vec{K} + \vec{G}) \times \hat{e}][(\vec{K} + \vec{G}') \times \hat{e}] \eta_{\vec{G}-\vec{G}'} \quad \text{Equation II. 17}$$

De cette façon, l'équation différentielle de Helmholtz pour le champ magnétique (Equation II.13) est transformée en une série d'équations algébriques pour les coefficients de Fourier  $\{C_{\vec{G}}\}$ .  $F_{\vec{G}\vec{G}'}$  est une matrice hermitienne. Pour chaque vecteur d'onde d'un état de Bloch  $\vec{K}$ , les valeurs propres  $\omega^2/c_0^2$  donnent plusieurs valeurs de  $\omega$ , ces dernières sont utilisées pour construire la relation de dispersion  $\omega - \vec{K}$  (figure II.5).

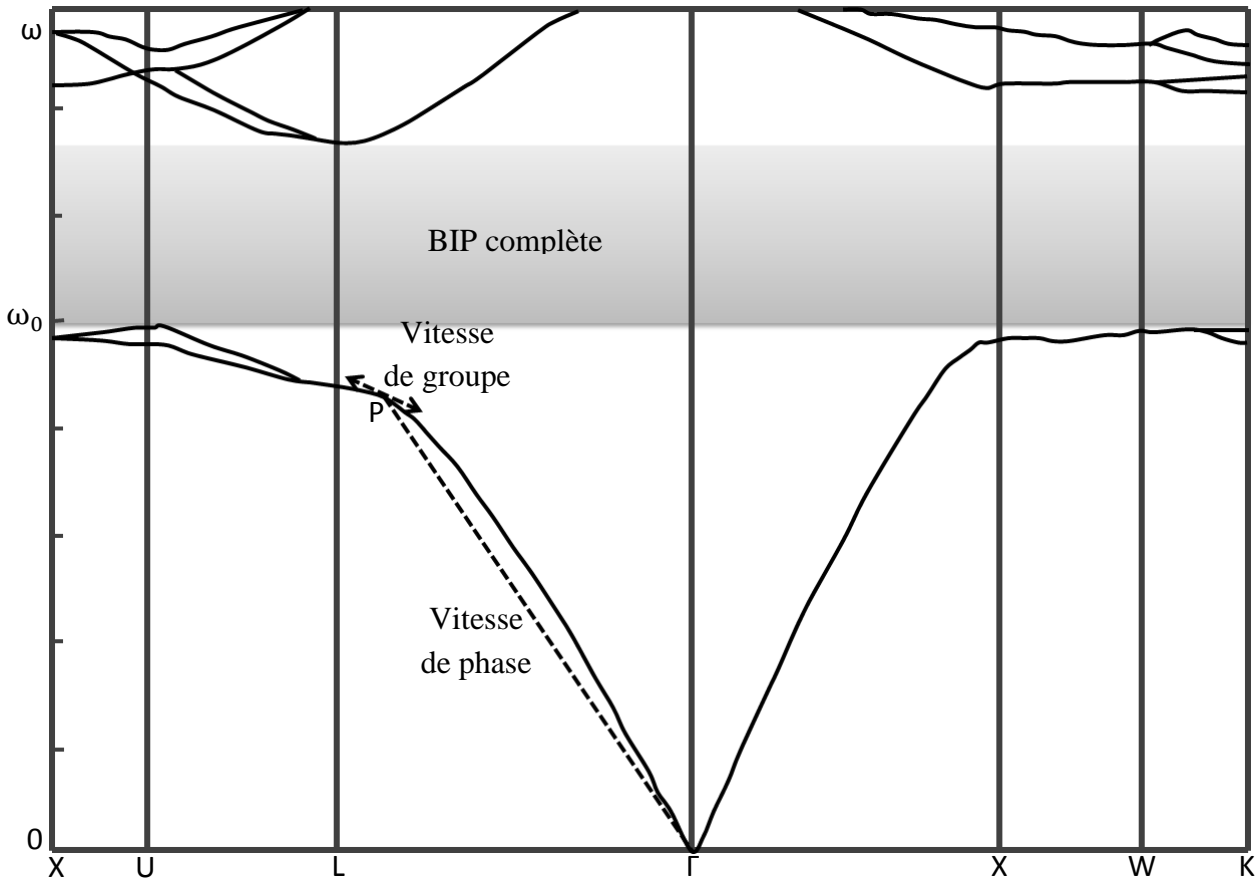


Figure II.5 : Relation de dispersion d'un cristal photonique 3D de type « diamant » ayant  $a$  comme paramètre de maille. La structure est formée de trous d'air, ayant un rayon égal à  $0,325a$ , dans un matériau homogène ayant un indice de réfraction  $n = 3,6$ . La BIP complète s'étend approximativement de  $\omega_0 = \pi c_0/a$  à  $1,32\omega_0$ . Cette image est prise de référence [27].

La figure II.5 présente un exemple d'une relation de dispersion d'un cristal photonique 3D de type « diamant » possédant une BIP complète où la propagation n'est pas possible pour ces pulsations. Le cristal photonique 3D, formé de trous d'air dans du silicium, est fabriqué en remplissant les trous d'une opale directe, formée d'un assemblage compact de microbilles de silice interconnectées durant la phase d'élaboration, avec du silicium et ensuite en dissolvant la silice pour avoir l'opale inverse [39]. La direction du plan (111) de la structure CFC de l'opale est suivant  $\Gamma L$ . La propagation de la lumière est perpendiculaire à cette direction. La BIP complète s'étend approximativement de  $\omega_0 = \pi c_0/a$  à  $1,32\omega_0$ . De ce fait, en variant le paramètre de maille  $a$ , la position de la BIP complète est variée ainsi la propagation de la lumière peut être contrôlée. Pour un point  $P$  appartenant à la zone  $\Gamma L$  de la courbe représentant la relation de dispersion du cristal photonique 3D, la pente de la droite  $\Gamma P$  représente la vitesse de phase tandis que la vitesse de groupe est la pente de la tangente en  $P$  à la courbe de dispersion. En conséquence, la vitesse de groupe diminue progressivement en s'approchant des bords de la BIP du fait que la courbe de dispersion s'aplatit, cela implique un temps d'interaction plus élevé entre l'onde et la matière.

## II.3. Relation de dispersion d'un cristal photonique ou magnéto-photonique 1D

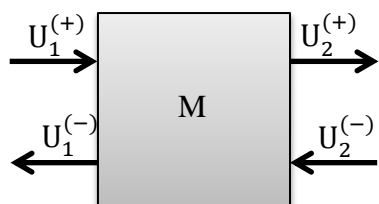
En se basant sur les éléments développés dans la partie précédente, notamment les modes de Bloch, mais en utilisant une approche matricielle la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D est étudiée. On pourra alors voir comment évolue cette équation de dispersion dans le cas d'un matériau magnéto-optique. D'après la littérature, la structuration périodique 1D conduit à une exaltation de l'effet Faraday au niveau de la BIP. De ce fait, on a choisi d'étudier théoriquement les cristaux photoniques 1D pour vérifier que la structuration 1D de notre matériau magnéto-optique composite conduit à un comportement similaire. On note qu'on s'est orienté vers une structuration 3D du matériau car la technique d'élaboration des opales est peu couteuse et facile à mettre en œuvre. Ainsi, les structures réalisées présentent une BIP complète où un comportement identique à celui des cristaux magnéto-photoniques 1D est attendu au niveau de la BIP.

### II.3.1. Approche matricielle

Une onde plane normalement incidente sur un système formé de plusieurs couches subit des réflexions et des transmissions sur les faces de chacune des couches, ce qui conduit à un phénomène d'interférences à ondes multiples. Quand le nombre des couches est élevé, le suivi des différentes réflexions et transmissions est difficile. Pour résoudre ce problème, on peut utiliser une représentation matricielle de chaque couche, et à l'intérieur de chaque couche la résultante des ondes multiples est écrite sous la forme de deux ondes contra directionnelles : les ondes qui se propagent vers la droite (sens aller), ayant une résultante notée  $U^{(+)}$ , et les ondes qui se propagent vers la gauche (sens retour), ayant une résultante notée  $U^{(-)}$ . Ainsi, la détermination de la propagation des ondes dans un système formé de plusieurs couches est alors équivalente à la détermination des amplitudes complexes de ces deux types d'ondes le long de ce système [27].

#### II.3.1.1. Présentation et propriétés générales

Soit  $U_1^{(+)}$  et  $U_1^{(-)}$  les résultantes des ondes multiples qui se propagent respectivement vers la droite et vers la gauche avant un système optique donnée. Egalement, soit  $U_2^{(+)}$  et  $U_2^{(-)}$  les résultantes des ondes multiples qui se propagent respectivement vers la droite et vers la gauche après ce système optique. Les amplitudes  $U_1^{(\pm)}$  et  $U_2^{(\pm)}$  sont reliées par la relation matricielle suivante :



$$\begin{bmatrix} U_2^{(+)} \\ U_2^{(-)} \end{bmatrix} = \underbrace{\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}}_M \begin{bmatrix} U_1^{(+)} \\ U_1^{(-)} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 18}$$

Avec  $M$ , matrice de transmission qui dépend des propriétés optiques du système.

Par exemple, pour une propagation à travers un milieu homogène de largeur  $d$  et d'indice de réfraction  $n$ , la matrice  $M$  est définie par :

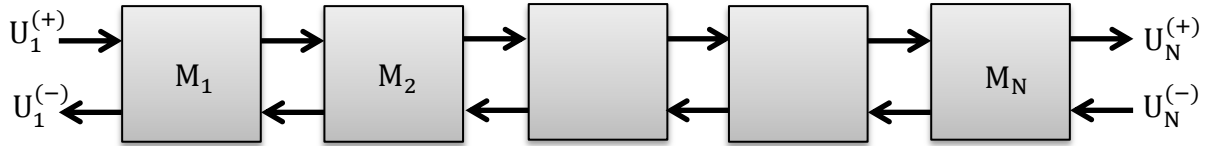
$$M = \begin{bmatrix} \exp(-j\varphi) & 0 \\ 0 & \exp(j\varphi) \end{bmatrix} \text{ avec } \varphi = nk d \quad \text{Equation II. 19}$$

Un système complexe est divisé en une série d'éléments basiques séparés par des interfaces, chacun ayant des matrices de transmission connues, soit  $M_1, M_2, \dots, M_N$ . Les amplitudes  $U_1^{(\pm)}$  et  $U_N^{(\pm)}$  sont reliées par une matrice  $M$  produit des matrices  $M_i$  ( $i = 1, 2, \dots, N$ ), soit :

$$M = M_N \dots M_2 M_1 \quad \text{Equation II. 20}$$

Avec:

$$\begin{bmatrix} U_N^{(+)} \\ U_N^{(-)} \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} U_1^{(+)} \\ U_1^{(-)} \end{bmatrix}$$



La matrice  $M$  peut être également définie sous la forme suivante [27] :

$$M = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} = \frac{1}{t_{21}} \begin{bmatrix} t_{12}t_{21} - r_{12}r_{21} & r_{21} \\ -r_{21} & 1 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 21}$$

Avec  $t_{12}$  et  $r_{12}$  la transmittance et la réflectivité d'une onde incidente de gauche,  $t_{21}$  et  $r_{21}$  la transmittance et la réflectivité d'une onde provenant de la droite, l'indice 12 veut dire que la lumière est incidente du milieu 1 vers le milieu 2.

Pour les systèmes sans pertes ayant une symétrie réciproque,  $t_{21} = t_{12} = t$  et  $r_{21} = r_{12} = r$  avec :

$$|t|^2 + |r|^2 = 1 \text{ et } \frac{t}{r} = -\left(\frac{t}{r}\right)^* \text{ et } \arg\{t\} - \arg\{r\} = \pm \frac{\pi}{2}$$

Ce qui donne :

$$M = \begin{bmatrix} 1 & r \\ \frac{1}{t^*} & \frac{r}{t} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 22}$$

Avec :

$$A = D^* \text{ et } B = C^* \text{ et } |A|^2 - |B|^2 = 1 \text{ et } \det M = 1$$

Ces relations seront utiles au paragraphe II.3.2. pour le calcul de la relation de dispersion.

### II.3.1.2. Matrice M de la cellule unitaire

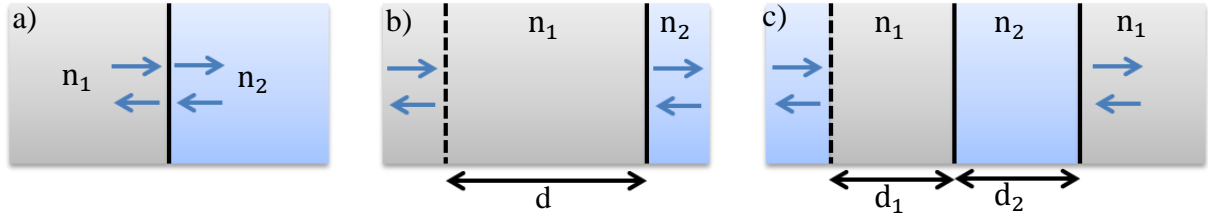


Figure II.6 : a) Transmission à travers une interface qui sépare deux milieux ayant deux indices de réfraction différents, b) propagation à travers un milieu d'indice de réfraction  $n_1$  et de largeur  $d$  suivie d'une transmission à travers l'interface d'un milieu d'indice de réfraction  $n_2$ , c) propagation à travers un milieu d'indice de réfraction  $n_1$  et de largeur  $d_1$  suivie d'une transmission à travers une couche mince d'indice de réfraction  $n_2$  et de largeur  $d_2$  suivie d'une transmission à travers l'interface d'un milieu d'indice de réfraction  $n_1$ .

Soit deux milieux ayant respectivement les indices de réfraction  $n_1$  et  $n_2$  (figure II.6.a), la matrice M d'une transmission d'un milieu d'indice  $n_1$  vers un milieu d'indice  $n_2$  s'écrit :

$$M = \frac{1}{2n_2} \begin{bmatrix} n_2 + n_1 & n_2 - n_1 \\ n_2 - n_1 & n_2 + n_1 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 23}$$

En multipliant cette matrice par celle de la transmission à travers un milieu homogène (Equation II.19), on obtient la matrice M de la figure II.6.b, à savoir une propagation suivie d'une interface :

$$M = \frac{1}{2n_2} \begin{bmatrix} (n_2 + n_1)\exp(-j\varphi) & (n_2 - n_1)\exp(j\varphi) \\ (n_2 - n_1)\exp(-j\varphi) & (n_2 + n_1)\exp(j\varphi) \end{bmatrix} \text{ avec } \varphi = n_1 kd \quad \text{Equation II. 24}$$

Le système représenté par la figure II.6.c correspond à la cellule unitaire d'un cristal photonique 1D. Il comprend deux sous-systèmes du même type que celui considéré dans la figure II.6.b. Dans le premier sous-système, la lumière se propage du milieu ayant un indice de réfraction  $n_1$  vers un milieu ayant un indice de réfraction  $n_2$  tandis que dans le second sous système, la lumière se propage du milieu ayant un indice de réfraction  $n_2$  vers un milieu ayant un indice de réfraction  $n_1$ . En multipliant les matrices de ces 2 sous systèmes, on obtient la matrice  $M_p$  de cette structure :

$$\frac{1}{4n_1 n_2} \begin{bmatrix} (n_1 + n_2)\exp(-j\varphi_2) & (n_1 - n_2)\exp(j\varphi_2) \\ (n_1 - n_2)\exp(-j\varphi_2) & (n_1 + n_2)\exp(j\varphi_2) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} (n_2 + n_1)\exp(-j\varphi_1) & (n_2 - n_1)\exp(j\varphi_1) \\ (n_2 - n_1)\exp(-j\varphi_1) & (n_2 + n_1)\exp(j\varphi_1) \end{bmatrix}$$

Avec  $\varphi_1 = n_1 kd_1$  et  $\varphi_2 = n_2 kd_2$ . Equation II. 25

En identifiant l'équation II.25 avec l'équation II.22 on peut écrire :

$$A = D^* = \frac{1}{t^*} = \frac{1}{4n_1 n_2} \left[ (n_1 + n_2)^2 \exp(-j(\varphi_1 + \varphi_2)) - (n_2 - n_1)^2 \exp(j(\varphi_2 - \varphi_1)) \right]$$

Equation II. 26

Cette dernière équation va servir à la détermination de la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D ainsi que celle d'un cristal magnéto-photonique 1D.

### II.3.2. Relation de dispersion d'un cristal photonique 1D

Soit un milieu périodique 1D formé d'un ensemble de cellules unitaires identiques qui se répètent périodiquement suivant une même direction  $z$  et dont la période est notée  $\Lambda$  (figure II.7).

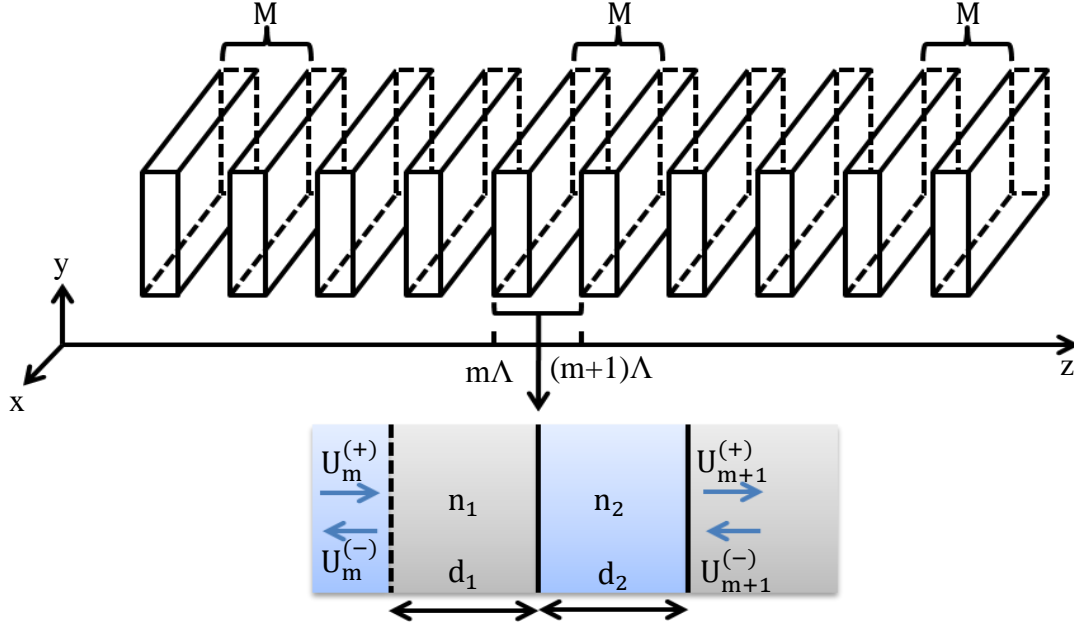


Figure II.7 : Réseau de Bragg.

Chaque cellule unitaire contient une succession de couches diélectriques sans pertes formant un système réciproque représenté par sa matrice  $M$  qui prend la forme générique de l'équation II.22. Le milieu est un réseau de Bragg infini. Une onde se propageant le long de ce milieu subit un nombre infini de transmissions et de réflexions. Afin de déterminer la relation de dispersion  $\omega - \vec{K}$  pour cette structure périodique 1D, on va rechercher les modes de Bloch en utilisant l'approche matricielle présentée dans le paragraphe II.3.1.

En utilisant la présentation du paragraphe précédent, on peut écrire pour la cellule unitaire :

$$\begin{bmatrix} U_{m+1}^{(+)} \\ U_{m+1}^{(-)} \end{bmatrix} = M_p \begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 27}$$

Avec  $M_p$  donnée par l'équation II.26.

Par définition, les modes de Bloch dans un milieu périodique peuvent s'écrire :

$$\begin{bmatrix} U_{m+1}^{(+)} \\ U_{m+1}^{(-)} \end{bmatrix} = \exp(-j\phi) \begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 28}$$

Ainsi, après une propagation sur une distance  $\Lambda$ , les amplitudes des ondes qui se propagent vers la droite ainsi que les amplitudes des ondes qui se propagent vers la gauche sont inchangées tandis que les phases sont modifiées par un déphasage  $\phi$  appelé phase de Bloch. Le vecteur de Bloch correspondant est  $K = \phi/\Lambda \Rightarrow \phi = K\Lambda$ .

Le problème de détermination des amplitudes complexes  $U_m^{(\pm)}$  et de la phase  $\phi$ , solutions de l'équation II.28, peut être résolu en le ramenant à un problème de détermination des valeurs propres, obtenu en combinant les deux relations précédentes :

$$M_p \begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix} = \exp(-j\phi) \begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 29}$$

Dans ce cas, le coefficient  $\exp(-j\phi)$  est la valeur propre et le vecteur ayant les composantes  $U_m^{(+)}$  et  $U_m^{(-)}$  est le vecteur propre.

Les valeurs propres sont déterminées en résolvant l'égalité suivant :

$$\det[M_p - \exp(-j\phi) I] = 0 \quad \text{Equation II. 30}$$

Avec  $I$  la matrice identité.

Sachant que  $|t|^2 + |r|^2 = 1$ , la solution de l'équation II.30 s'écrit :

$$\exp(-j\phi) = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{t} + \frac{1}{t^*} \right) \pm j \left\{ 1 - \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{1}{t} + \frac{1}{t^*} \right) \right]^2 \right\}^{1/2} \quad \text{Equation II. 31}$$

D'où :

$$\cos \phi = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{t} + \frac{1}{t^*} \right) = \text{Re} \left\{ \frac{1}{t} \right\} \quad \text{Equation II. 32}$$

En utilisant l'équation II.26 et en appliquant la propriété  $\text{Re}\{1/t\} = \text{Re}\{1/t^*\}$ , l'équation II.32 donne :

$$\cos K\Lambda = \frac{1}{4n_1n_2} [(n_1 + n_2)^2 \cos(\varphi_1 + \varphi_2) - (n_2 - n_1)^2 \cos(\varphi_2 - \varphi_1)]$$

Avec  $\varphi_1 = n_1 k d_1$  et  $\varphi_2 = n_2 k d_2$ . Equation II. 33

Cette dernière équation est la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D. Elle permet d'analyser la propagation de la lumière dans les structures périodiques type « réseau de Bragg ».

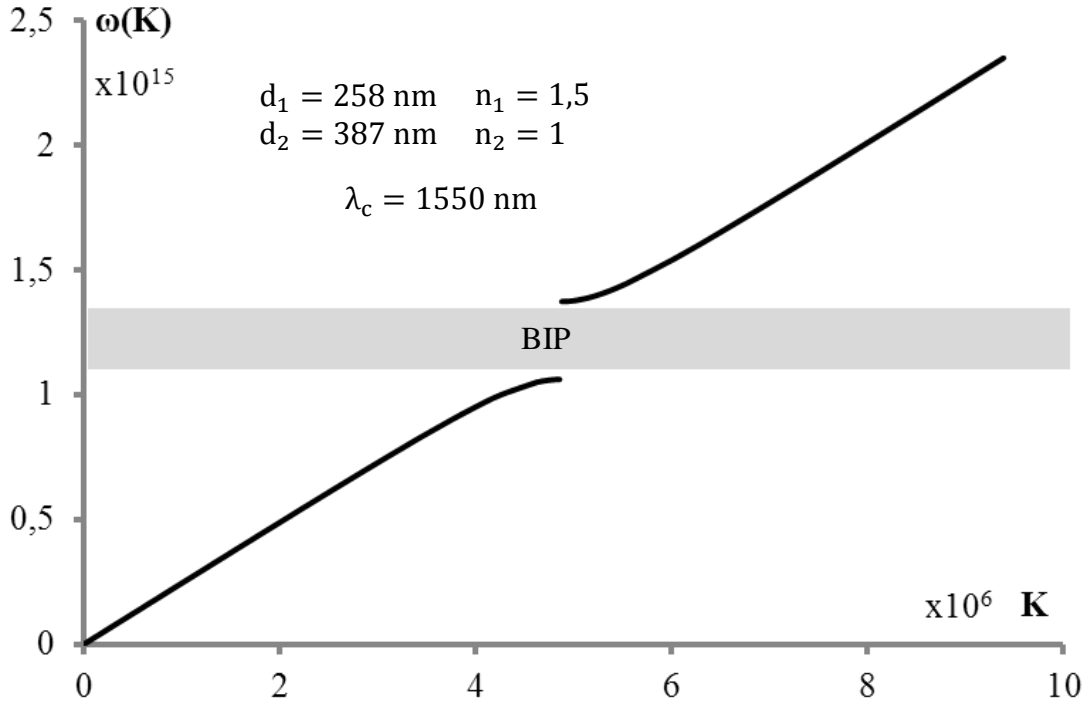


Figure II.8 : Relation de dispersion en fonction du vecteur d'onde K pour la structure périodique de la figure II.7.

La figure II.8 représente la fréquence angulaire en fonction du vecteur d'onde K calculée pour une structure périodique. La valeur de  $n_1$  est proche de la valeur de l'indice de réfraction du matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C et utilisé pour la fabrication des cristaux magnéto-photoniques 3D au cours de ce travail, tandis que la valeur de  $n_2$  correspond à la valeur de l'indice de réfraction de l'air. La longueur d'onde centrale  $\lambda_c$  est fixée à 1550 nm. Elle est reliée à la largeur de la couche par la relation :

$$d_i = \frac{\lambda_c}{4n_i} \text{ avec } i = 1, 2 \quad \text{Equation II. 34}$$

Le graphe montre que  $\omega - \vec{k}$  n'est pas continue et présente une discontinuité sur une zone où l'équation II.33 n'a pas de solutions. Cette zone est la BIP, il n'y a pas de propagation possible pour ces pulsations. Dans l'équation II.33, le terme de droit est alors supérieur à 1, ce qui ne permet pas d'obtenir de solution pour la fonction cosinus. Aux bords de cette BIP la relation de dispersion s'aplatit progressivement, cela indique que la vitesse de propagation des ondes électromagnétiques diminue progressivement en s'approchant du centre de la BIP. Elle devient strictement nulle sur les deux limites.

### II.3.2.1. Répartition du champ électrique

Afin d'étudier la répartition du champ électrique pour des pulsations proches de la BIP, il faut tout d'abord définir le vecteur propre  $\begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix}$  associé à la valeur propre  $\exp(-j\phi)$  qui vaut -1 en bords de la BIP. Les composantes du vecteur propre sont déterminées d'après la relation :



$$U_m^{(-)} = \frac{t}{r} \exp(-j\phi) - \frac{1}{t^*} U_m^{(+)} \quad \text{Equation II. 35}$$

Le champ électrique en tout point  $z$  de la première couche d'indice de réfraction  $n_1$  et de largeur  $d_1$  est la somme d'une onde propagative et d'une onde contra propagative, il s'écrit alors :

$$E(z) = U_m^{(+)} \exp(-jn_1 kz) + U_m^{(-)} \exp(jn_1 kz) \quad \text{Equation II. 36}$$

Avec  $0 \leq z \leq d_1$ .

En utilisant la matrice  $M$  d'une propagation suivie par une interface (Equation II.24), l'onde  $\begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix}$  juste après l'interface qui sépare la première couche d'indice de réfraction  $n_1$  et de largeur  $d_1$  de la deuxième couche d'indice de réfraction  $n_2$  et de largeur  $d_2$  s'écrit :

$$\begin{bmatrix} U_m^{(+)} \\ U_m^{(-)} \end{bmatrix} = \frac{1}{2n_2} \begin{bmatrix} (n_2 + n_1)U_0^{(+)} \exp(-j\varphi_1) & (n_2 - n_1)U_0^{(-)} \exp(j\varphi_1) \\ (n_2 - n_1)U_0^{(+)} \exp(-j\varphi_1) & (n_2 + n_1)U_0^{(-)} \exp(j\varphi_1) \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 37}$$

Le champ électrique en tout point  $z$  de la deuxième couche d'indice de réfraction  $n_2$  et de largeur  $d_2$  s'écrit :

$$E(z) = U_m^{(+)} \exp(-jn_2 k(z - d_1)) + U_m^{(-)} \exp(jn_2 k(z - d_1)) \quad \text{Equation II. 38}$$

Avec  $d_1 \leq z \leq \Lambda$ .

Comme le cristal photonique 1D considéré est formée d'une succession périodique de cellules unitaires de largeur  $\Lambda$ , la détermination du champ électrique dans la structure se fait ensuite par périodicité. On a alors :

$$E(z - \Lambda) = p_k(z - \Lambda) \exp(-jK(z - \Lambda)) \quad \text{Equation II. 39}$$

Avec  $p_k(z)$  une fonction périodique de période  $\Lambda$ , d'où :

$$E(z - \Lambda) = p_k(z) \exp(-jKz) \exp(jK\Lambda) = E(z) \exp(jK\Lambda) \quad \text{Equation II. 40}$$

De ce fait, le champ électrique en tout point  $z$  de la troisième couche d'indice de réfraction  $n_1$  et de largeur  $d_1$  s'écrit :

$$E(z) = \left[ U_m^{(+)} \exp(-jn_1 k(z - \Lambda)) + U_m^{(-)} \exp(jn_1 k(z - \Lambda)) \right] \exp(jK\Lambda) \quad \text{Equation II. 41}$$

Avec  $\Lambda \leq z \leq \Lambda + d_1$ .

De même, le champ électrique en tout point  $z$  de la quatrième couche d'indice de réfraction  $n_2$  et de largeur  $d_2$  s'écrit :

$$E(z) = \left[ U_m^{(+)} \exp(-jn_2 k(z - (\Lambda + d_1))) + U_m^{(-)} \exp(jn_2 k(z - (\Lambda + d_1))) \right] \exp(jK\Lambda)$$

Avec  $\Lambda + d_1 \leq z \leq 2\Lambda$ .

Equation II. 42

Le même principe est appliqué pour déterminer la valeur du champ électrique dans le reste des cellules unitaires qui forment le cristal photonique 1D.

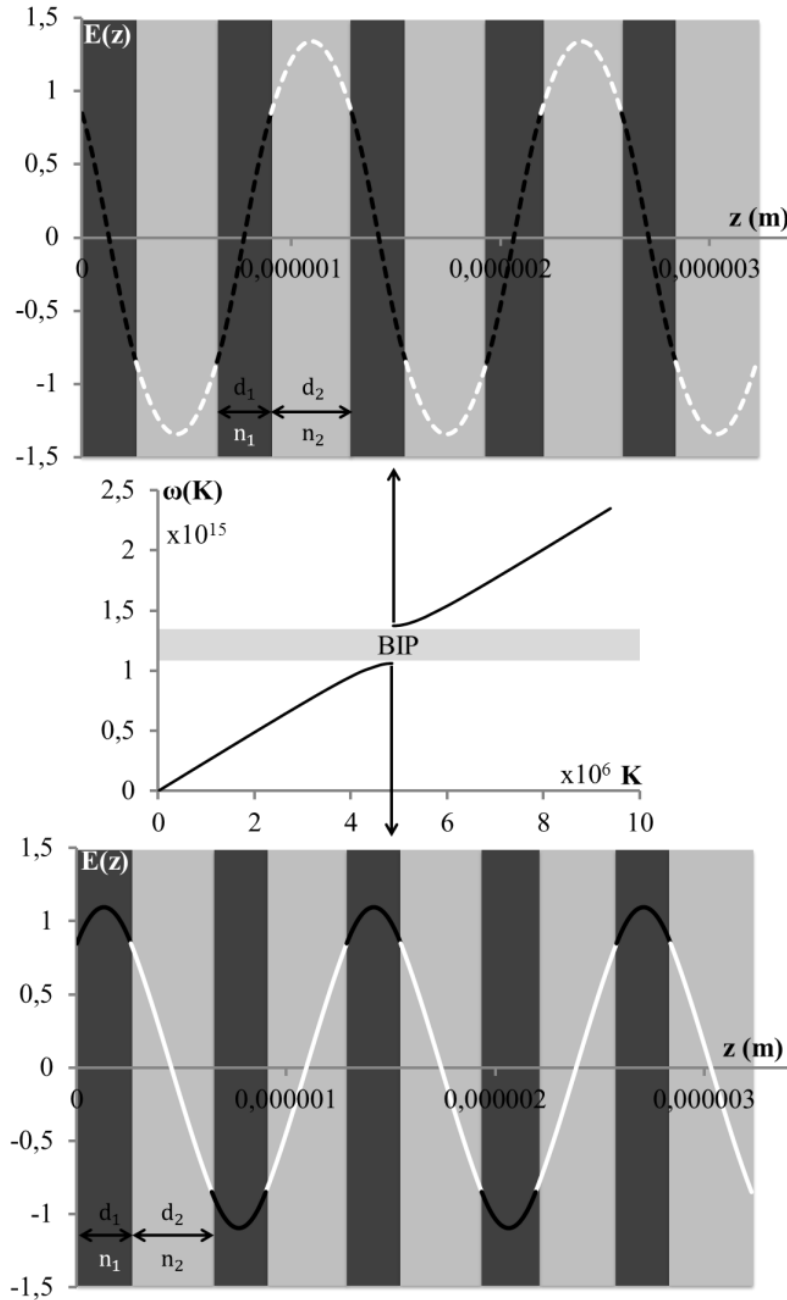


Figure II.9 : Répartition du champ électrique pour les pulsations limites de la BIP d'un cristal photonique 1D avec  $n_1 > n_2$  et  $d_1 < d_2$ .

La figure II.9 représente la répartition du champ électrique pour la pulsation limite de la BIP d'un cristal photonique 1D. Ce dernier est formé d'une succession de couches de largeurs respectives  $d_1 = 258\text{nm}$  et  $d_2 = 387\text{nm}$  avec les indices de réfraction respectifs  $n_1 = 1,5$  et  $n_2 = 1$ . La courbe en trait plein représente le champ électrique pour les pulsations limites en haut de la bande située au-dessous de la BIP tandis que la courbe en pointillé représente le

champ électrique pour la pulsation limite en bas de la bande située au-dessus de la BIP. On remarque que pour les pulsations en bords de la BIP, le champ électrique est concentré soit dans les couches à haut indice de réfraction, soit dans les couches à bas indice de réfraction. De ce fait, l'énergie électromagnétique pour les pulsations limites au-dessous sera supérieure à celle au-dessus de la BIP car dans le premier cas, les sommets du champ électrique se concentrent dans les régions à haut indice de réfraction. L'énergie électromagnétique est déterminée par l'équation suivante :

$$E_m(z) = \frac{n_i^2 |E(z)|^2}{2} \text{ avec } i = 1, 2 \quad \text{Equation II. 43}$$

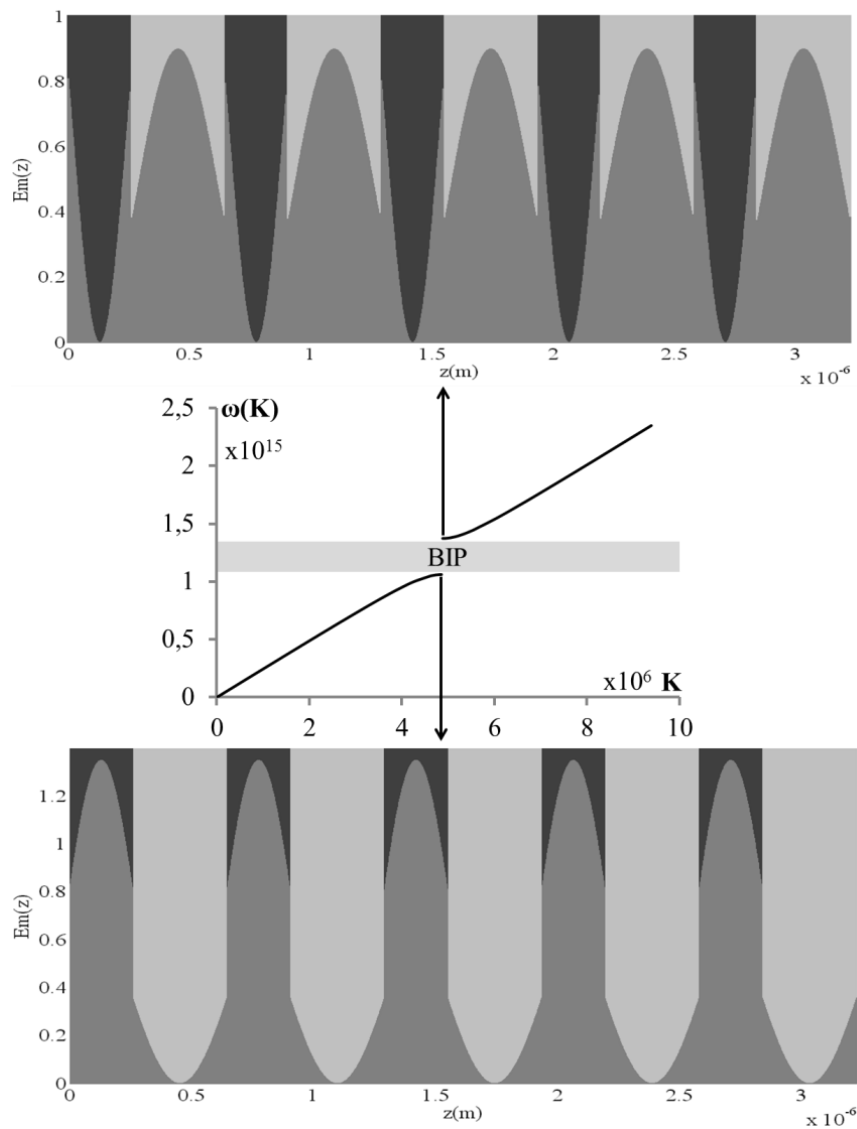


Figure II.10 : Répartition de l'énergie électromagnétique pour les pulsations limites de la BIP d'un cristal photonique 1D avec  $n_1 > n_2$  et  $d_1 < d_2$ .

La figure II.10 représente la répartition de l'énergie électromagnétique pour la pulsation limite de la BIP d'un cristal photonique 1D. Comme on peut le distinguer sur la figure, l'énergie électromagnétique est concentrée le plus dans la couche à haut indice de réfraction pour les pulsations limites en haut de la bande située au-dessous de la BIP.

### II.3.3. Relation de dispersion d'un cristal magnéto-photonique 1D

En se basant sur le calcul détaillé dans le paragraphe précédent, la relation de dispersion d'un cristal magnéto-photonique 1D est calculée en considérant que la couche ayant un haut indice de réfraction  $n_1$  et une largeur  $d_1$  est magnétique avec une aimantation orientée perpendiculairement aux interfaces. La propagation se fait selon Oz.

Pour un tel matériau aimanté selon Oz, le tenseur permittivité s'écrit [87] :

$$\hat{\epsilon}^{(n)} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx}^{(n)} & \epsilon_{xy}^{(n)} & 0 \\ -\epsilon_{xy}^{(n)} & \epsilon_{xx}^{(n)} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz}^{(n)} \end{pmatrix} \quad \text{Equation II. 44}$$

Nous avons montré dans le chapitre précédent, que dans ce cas, les états propres sont les vibrations circulaires droite (vcd) et gauche (vcg) avec les indices de propagation respectifs suivants :

$$n_d = \sqrt{\epsilon_{xx} - \epsilon_{xy}}$$

$$n_g = \sqrt{\epsilon_{xx} + \epsilon_{xy}}$$

Dans la mesure où ces deux types de polarisation propres présentent des indices de propagation différents, on peut en déduire d'après l'équation II.33 que leur équations de dispersion sont différentes.

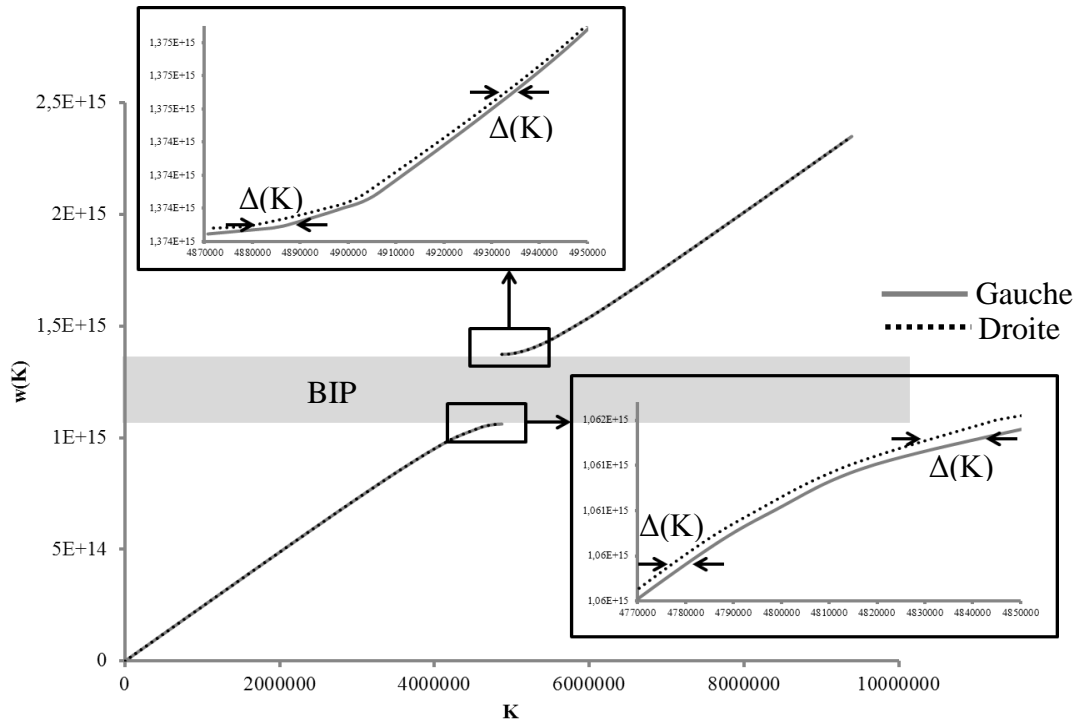


Figure II.11 : Fréquence angulaire  $\omega(K)$  en fonction du vecteur d'onde  $K$  pour une vibration circulaire droite et une vibration circulaire gauche. L'intérieur de la figure montre un zoom au niveau de la BIP. La structure est périodique alternant des couches magnéto-optiques et l'air.

Ainsi, la figure II.11 représente la fréquence angulaire en fonction du vecteur d'onde  $K_i$  avec  $i = g, d$  calculée respectivement pour une vibration circulaire gauche et une vibration circulaire droite. La valeur de  $\epsilon_{xx}$  est égale à 2,25 tandis que la valeur de  $\epsilon_{xy}$  est égale à  $2,6 \cdot 10^{-4}$ . Ces valeurs correspondent à un matériau magnéto-optique composite, formé d'une matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt de concentration volumique 1%, pour une longueur d'onde égale à 1550 nm. Comme  $\epsilon_{xy} < \epsilon_{xx}$  [87], les deux courbes apparaissent superposées. Néanmoins, le zoom de la figure II.11, effectué au niveau de la BIP, montre que les deux courbes ne sont pas totalement superposées. La courbe en trait plein représente la vibration circulaire droite tandis que la courbe en pointillés représente la vibration circulaire gauche. On observe nettement que la différence  $\Delta(K)$  entre  $K_g$  et  $K_d$  augmente progressivement en s'approchant de plus en plus de la BIP. Cette différence est représentée en fonction de la longueur d'onde  $\lambda = 2\pi c_0/\omega$  sur la figure II.12.

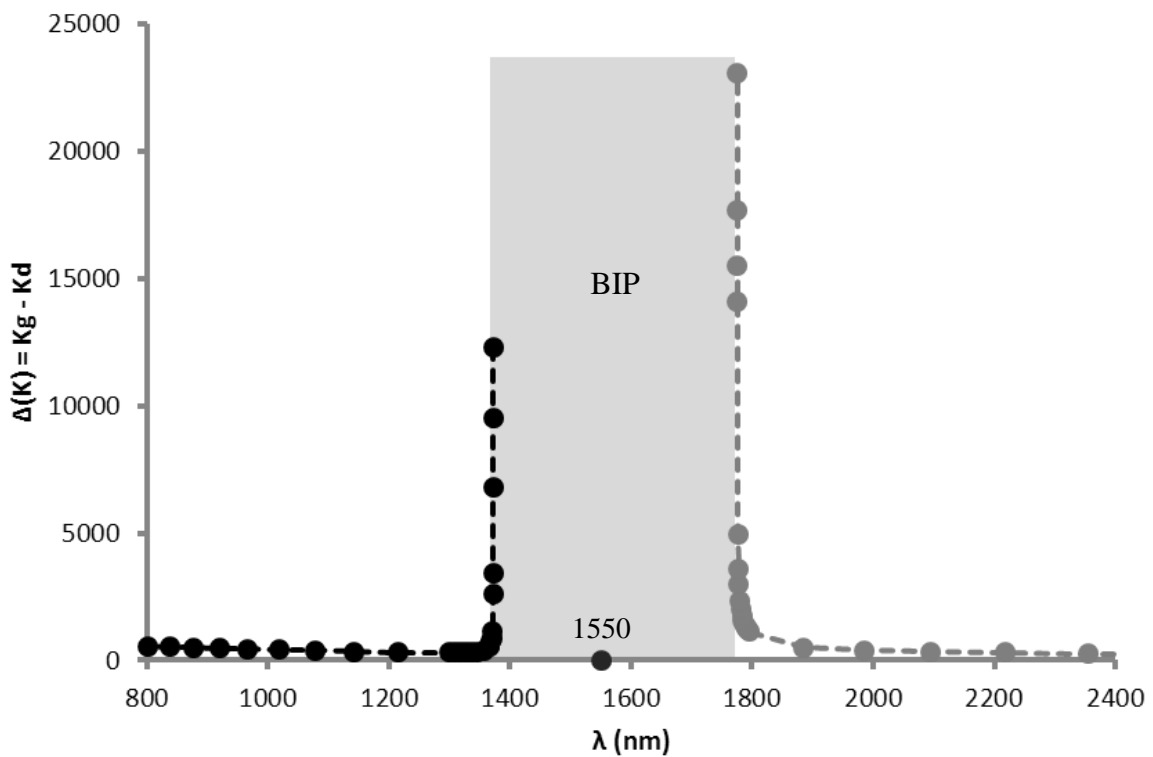


Figure II.12 : Différence  $\Delta(K)$  entre les vecteurs d'onde  $K_g$  et  $K_d$  au niveau de la BIP pour une structure périodique alternant des couches magnéto-optiques et l'air.

Il faut rappeler que dans le matériau, les deux polarisations circulaires droite et gauche se propagent à des vitesses différentes et avec des absorptions différentes. Ainsi, au bout d'une longueur  $h$  elles sont déphasées l'une par rapport à l'autre. A la sortie, les deux ondes se recombinent pour donner une vibration polarisée elliptiquement. Cette dernière est caractérisée par deux angles : la rotation Faraday  $\theta_F$  et l'ellipticité Faraday  $\epsilon_F$ . La rotation Faraday définie par  $\theta_F = (L/2) \text{Re}(K_g - K_d)$  est directement proportionnelle à  $\Delta(K)$ . De ce fait, pour une structure périodique 1D, une plus grande valeur de la rotation Faraday est prédite en bords de la BIP. Notons que la valeur de  $\Delta(K)$  en bord supérieur de la BIP est plus grande que celle en bord inférieur. En conséquence, l'exaltation de la valeur de  $\theta_F$  en bord

supérieur de la BIP est plus importante que celle en bord inférieur. Cette observation est en concordance avec la répartition du champ électrique détaillée au paragraphe II.3.2.1. où l'énergie électromagnétique est concentrée le plus dans la couche à haut indice de réfraction à caractère magnétique pour la pulsation limite en haut de bande située au-dessous de la BIP. On attend le même comportement pour les cristaux magnéto-photoniques 3D où la matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt joue le rôle de la couche à haut indice de réfraction, et l'air joue le rôle de la couche à bas indice de réfraction.

De plus, en comparant l'allure de la courbe qui illustre la relation de dispersion d'un cristal magnéto-photonique 1D (figure II.11) avec celle qui illustre la relation de dispersion d'un cristal photonique 3D (figure II.5), on remarque que l'aplatissement observé aux bords de la BIP dans le cas de la figure II.11 est identique à celui observé au voisinage du point P dans le cas de la figure II.5. De ce fait, l'exaltation de la valeur de la rotation Faraday est possible aux bords de la BIP d'un cristal magnéto-photonique 3D.

## **II.4. Simulation en 1D pour la détermination du facteur de mérite**

Dans les deux parties précédentes, l'influence de la structuration sur la propagation des ondes électromagnétiques dans une structure périodique a été illustrée. De plus, le calcul de la relation de dispersion, en utilisant des valeurs proches à ceux du matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C, a permis de prévoir une augmentation de la valeur de la rotation Faraday aux bords de la BIP. Par contre, ce matériau était supposé transparent et le tenseur de permittivité constant. Dans ce paragraphe, le but est de pousser le calcul afin de prévoir le comportement du facteur de mérite.

Dans la suite, on détaillera tout d'abord l'approche matricielle qu'on utilisera dans nos simulations pour déterminer les valeurs de la transmittance, la réflectivité, la rotation et ellipticité Faraday ainsi que le facteur de mérite. Ensuite, on montrera l'effet de la structuration sur le comportement spectral de l'effet Faraday pour différentes structures 1D. Enfin, on présentera l'apport de la structuration à l'exaltation de la valeur du facteur de mérite pour les différentes structures 1D.

### **II.4.1. Approche théorique : calcul de la matrice de transfert**

On utilise ici une approche matricielle de même type que celle développée précédemment, sauf qu'il faut tenir compte des modes propres droit et gauche. Ainsi, en suivant le formalisme de Visnovsky *et al* [87, 88] les vecteurs sont désormais composés de quatre éléments : les ondes propagatives droite et gauche et les contra propagatives droite et gauche. En allant plus dans le détail, on considère une structure formée de  $N$  couches homogènes séparées par les interfaces en  $z = z_n$  ( $n = 1, \dots, N$ ) tel que  $z_{n-1} < z_n$ . La structure est confinée entre le milieu semi-infini  $z < z_0$  et le milieu semi infini  $z > z_N$  notés respectivement milieu semi-infini (0) et  $(N + 1)$  (figure II.13).

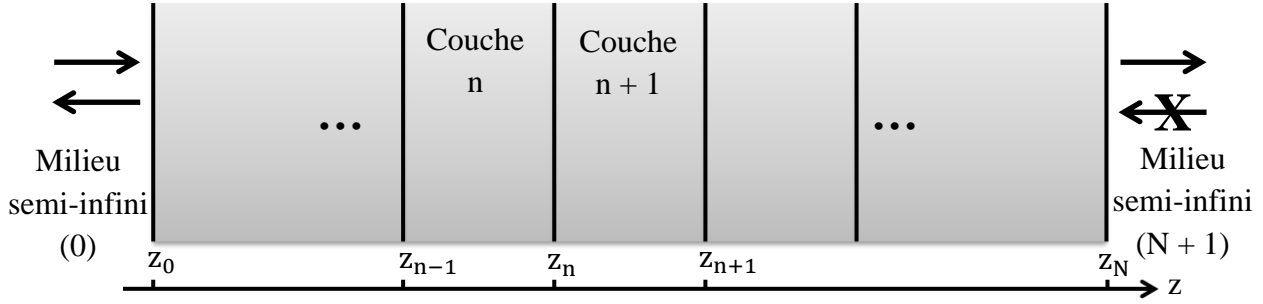


Figure II.13 : Représentation schématique de la structure étudiée.

Sachant que la direction de magnétisation est perpendiculaire aux interfaces, la couche  $n$  confinée entre les interfaces  $z = z_{n-1}$  et  $z = z_n$  est caractérisée par le tenseur permittivité suivant :

$$\hat{\epsilon}^{(n)} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx}^{(n)} & \epsilon_{xy}^{(n)} & 0 \\ -\epsilon_{xy}^{(n)} & \epsilon_{xx}^{(n)} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz}^{(n)} \end{pmatrix} \quad \text{Equation II. 45}$$

Dans un tel milieu, les modes propres de propagation sont circulaires. En considérant qu'il n'y a pas de lumière qui se propage dans le sens négatif dans le milieu semi-infini  $(N+1)$ , la relation liant les vibrations circulaires gauches aux vibrations circulaires droites dans les milieux semi-infinis  $(0)$  et  $(N+1)$  est la suivante :

$$\begin{bmatrix} E_+^{(i)} \\ E_+^{(r)} \\ E_-^{(i)} \\ E_-^{(r)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} & 0 & 0 \\ M_{21} & M_{22} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & M_{33} & M_{34} \\ 0 & 0 & M_{43} & M_{44} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_+^{(t)} \\ 0 \\ E_-^{(t)} \\ 0 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II. 46}$$

Avec  $E_{\pm}^{(i)}$ ,  $E_{\pm}^{(r)}$  et  $E_{\pm}^{(t)}$  les amplitudes complexes respectives du champ électrique pour une vibration circulaire gauche ou droite incidente, une vibration circulaire gauche ou droite réfléchie, et une vibration circulaire gauche ou droite transmise.

La matrice  $M$  représentant la structure est donnée par le produit suivant :

$$M = [D^{(0)}]^{-1} \prod_{n=1}^N S^{(n)} D^{(N+1)} \quad \text{Equation II. 47}$$

Avec :

$$S^{(n)} = \begin{bmatrix} \cos \beta_+^{(n)} & i\eta_+^{(n)-1} \sin \beta_+^{(n)} & 0 & 0 \\ i\eta_+^{(n)} \sin \beta_+^{(n)} & \cos \beta_+^{(n)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos \beta_-^{(n)} & i\eta_-^{(n)-1} \sin \beta_-^{(n)} \\ 0 & 0 & i\eta_-^{(n)} \sin \beta_-^{(n)} & \cos \beta_-^{(n)} \end{bmatrix}$$

Pour  $n = 1, 2, \dots, N$

Equation II. 48

Où :

$$\beta_{\pm}^{(n)} = \frac{\omega}{c} \eta_{\pm}^{(n)} d_n$$

$d_n$  est la largeur de la couche  $n$ . Pour une couche non-magnétique  $\eta_+^{(n)} = \eta_-^{(n)}$ .

$D$  est la matrice dynamique qui représente la continuité du champ aux interfaces entre les couches. Elle est donnée par :

$$D^{(n)} = \begin{bmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ \eta_+^{(n)} & -\eta_+^{(n)} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & \eta_-^{(n)} & -\eta_-^{(n)} \end{bmatrix}$$

Pour  $n = 1, 2, \dots, N$

Equation II. 49

Où :

$$\eta_{\pm}^{(n)} = \sqrt{\varepsilon_{xx}^{(n)} \pm i\varepsilon_{xy}^{(n)}}$$

Les coefficients de transmission  $t_+$  et  $t_-$  et de réflexion  $r_+$  et  $r_-$  respectivement pour une vibration circulaire droite et une vibration circulaire gauche sont donnés par :

$$t_+ = (M_{11})^{-1} \text{ et } t_- = (M_{33})^{-1} \text{ et } r_+ = \frac{M_{21}}{M_{11}} \text{ et } r_- = \frac{M_{43}}{M_{33}}$$

L'effet Faraday est exprimé comme suit :

$$\Theta_F(^{\circ}) = -i \frac{M_{11} - M_{33}}{M_{11} + M_{33}} \frac{180}{\pi}$$

Equation II. 50

Ainsi, pour des faibles valeurs de  $\theta_F$  et de  $\varepsilon_F$ ,  $\Theta_F(^{\circ}) \approx \theta_F + i\varepsilon_F$  d'où :

$$\theta_F(^{\circ}) = \text{Re}\{\Theta_F\} \text{ et } \varepsilon_F(^{\circ}) = \text{Im}\{\Theta_F\}$$

La transmittance est exprimée comme suit :

$$T = \frac{n_{\text{Sub}}}{2n_{\text{Bas}}} \left( \frac{|M_{11}|^2 + |M_{33}|^2}{|M_{11}|^2 + |M_{33}|^2} \right)$$

Equation II. 51

Où  $n_{\text{Sub}}$  est l'indice de réfraction du substrat et  $n_{\text{Bas}}$  est celui de la couche à bas indice de réfraction.

La réflectivité est exprimée comme suit :

$$R = \frac{1}{2} \left( \left| \frac{M_{21}}{M_{11}} \right|^2 + \left| \frac{M_{43}}{M_{33}} \right|^2 \right)$$

Equation II. 52



A l'interface d'un milieu absorbant d'épaisseur  $d$  et de coefficient d'absorption  $\alpha$  (voir figure I.26), l'intensité de la lumière est  $(I_i - I_r)$  avec  $I_i$  et  $I_r$  respectivement l'intensité de la lumière incidente et réfléchie. Au bout de  $d$ , l'intensité de la lumière sortante est  $I_t = (I_i - I_r)e^{-\alpha d}$  avec  $I_t = TI_i$  et  $I_r = RI_i$ . L'équivalent d'absorption ( $\alpha d$ ) en enlevant les effets de réflexion s'écrit alors :

$$\alpha d = \ln\left(\frac{1 - R}{T}\right) \quad \text{Equation II. 53}$$

Finalement le facteur de mérite  $M$  est calculé comme suit :

$$M = \frac{\theta_F}{\alpha d} \quad \text{Equation II. 54}$$

En appliquant ces formules théoriques, la simulation des structures périodiques 1D est possible [11, 89]. Cela permet de déterminer le facteur de mérite pour chaque structure afin de les comparer au facteur de mérite de la couche magnéto-optique de référence.

#### II.4.2. Simulation des structures périodiques 1D

Inoue *et al* [4-7] ont largement étudié les structures périodiques à multicouches alternant des matériaux respectivement à haut et bas indices de réfraction. Ces systèmes sont des cristaux photoniques 1D ayant une BIP où les modes sont fortement localisés. Deux structures ont été principalement soulignées par Inoue *et al*. La première est la structure périodique qui alterne des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction avec des couches d'un matériau à bas indice de réfraction. Tandis que la deuxième est la structure dite microcavité qui est formée d'une couche magnéto-optique confinée entre deux réseaux de Bragg. Ces derniers alternent des couches de matériaux respectivement à haut et bas indices de réfraction. Dans ces deux types de systèmes périodiques, une augmentation de la valeur de la rotation Faraday est observée aux bords de la BIP, pour la structure périodique, et à l'intérieur de la BIP, pour la structure dite microcavité.

Des valeurs mesurées expérimentalement sur une couche d'un matériau magnéto-optique composite, formé d'une matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt de concentration volumique  $\Phi = 1\%$ , sont utilisées pour la simulation. Les figure II.14, figure II.15 représentent les courbes de la rotation et de l'ellipticité Faraday, de l'indice de réfraction ( $n$ ) et du coefficient d'extinction ( $k$ ), en fonction de la longueur d'onde du matériau. Les termes hors diagonaux du matériau ( $\varepsilon_{xy} = \varepsilon'_{xy} + i\varepsilon''_{xy}$ ) sont calculés en appliquant les équations suivantes [90] :

$$\varepsilon'_{xy} = \frac{\lambda}{\pi}(n\theta_F - k\varepsilon_F)$$

$$\varepsilon''_{xy} = \frac{\lambda}{\pi}(n\theta_F + k\varepsilon_F)$$

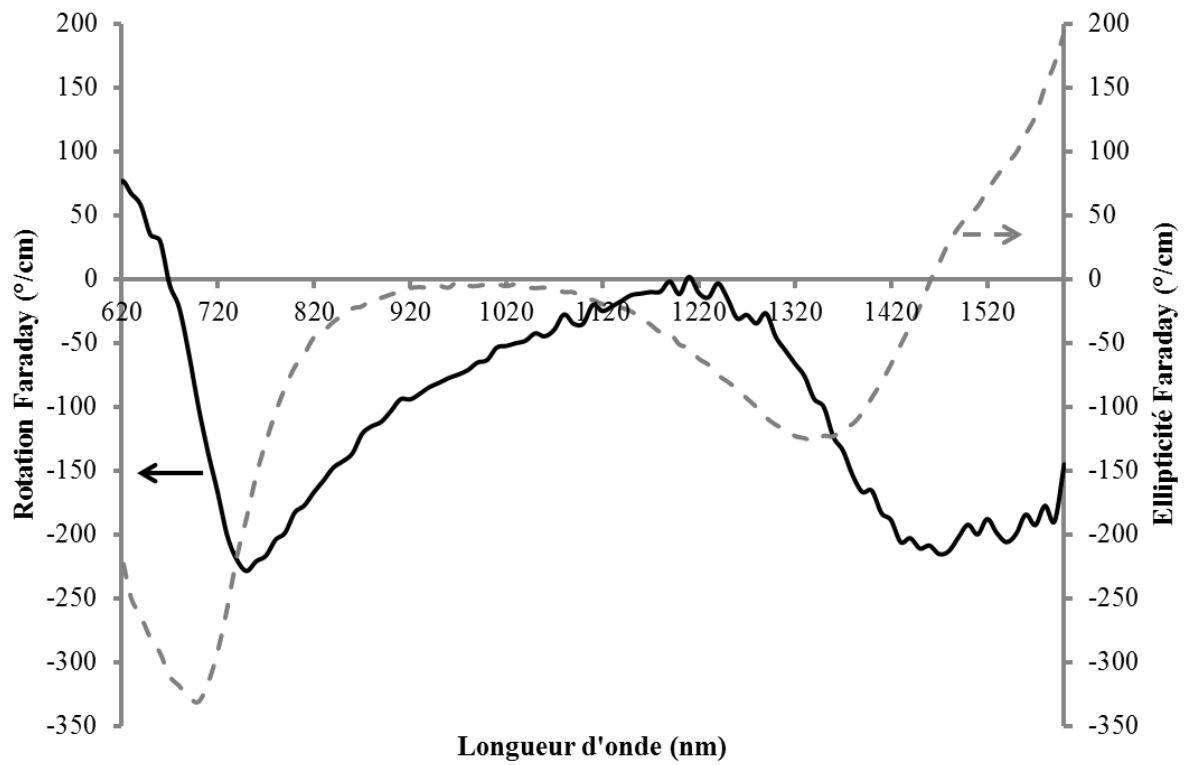


Figure II.14 : Rotation et Ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde du matériau magnéto-optique composite ( $\Phi = 1\%$ ).

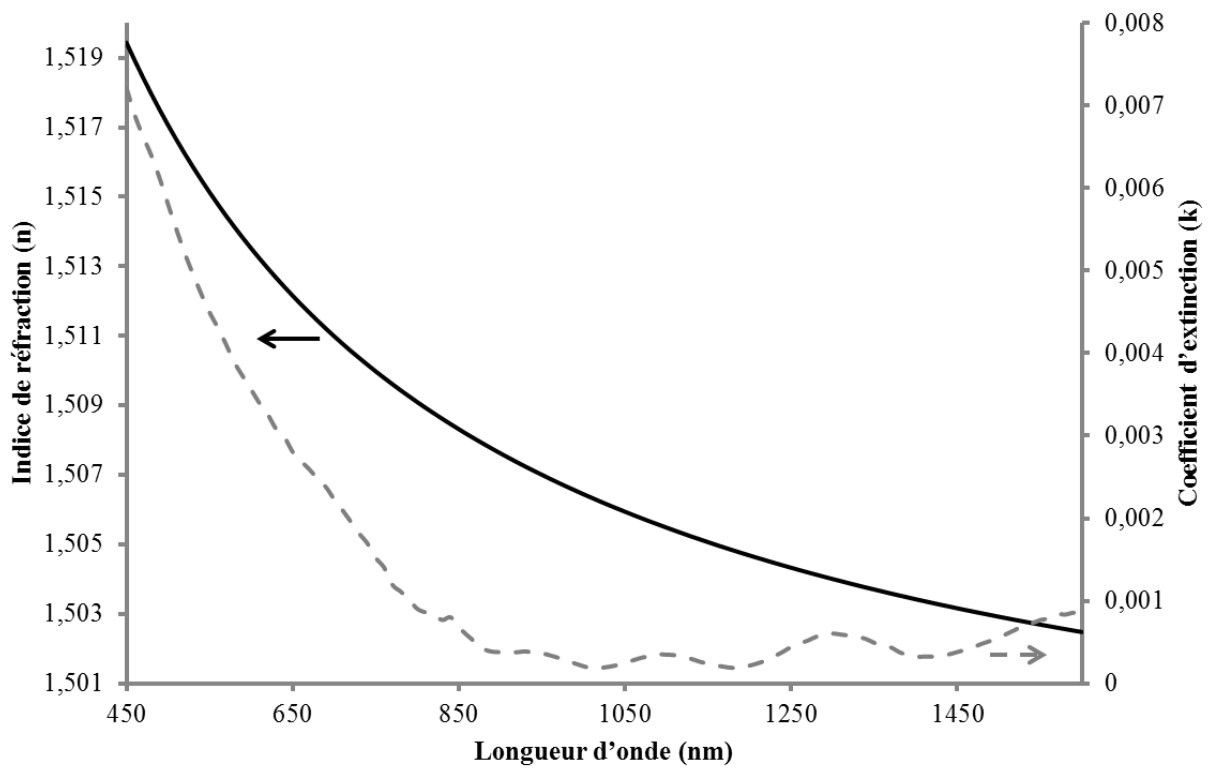


Figure II.15 : Indice de réfraction et coefficient d'extinction en fonction de la longueur d'onde du matériau magnéto-optique composite ( $\Phi = 1\%$ ).

Pour la comparaison du facteur de mérite, la simulation est faite pour les cas suivants :

- couche magnéto-optique de référence d'épaisseur égale à 2800 nm ;
- structure périodique alternant des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction avec des couches d'air à bas indice de réfraction. L'épaisseur totale du matériau magnéto-optique dans cette structure est égale à 2790 nm ;
- structure périodique alternant des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction avec des couches d'air à bas indice de réfraction. Cette structure possède un défaut en forme d'une microcavité d'air à son bord. L'épaisseur totale du matériau magnéto-optique dans cette structure est égale à 2790 nm ;
- structure périodique alternant des couches diélectriques à haut indice de réfraction avec des couches d'air à bas indice de réfraction. Cette structure possède un défaut magnéto-optique en forme d'une microcavité. L'épaisseur totale du matériau magnéto-optique dans cette structure est égale à 479 nm.

#### II.4.2.1. Structure périodique 1D : magnéto-optique/air

Cette structure périodique est constituée de 19 couches. Elle alterne des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction de largeur  $d_m$  avec des couches d'air à bas indice de réfraction de largeur  $d_a$  (figure II.16).

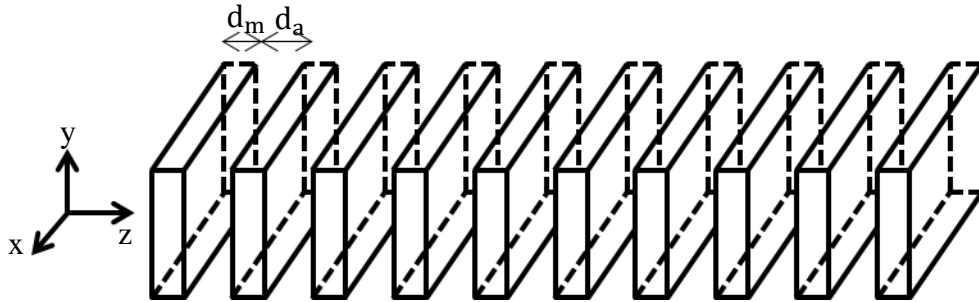


Figure II.16 : Structure périodique 1D formée de couches magnéto-optiques et de couches d'air.

Les largeurs  $d_m$  et  $d_a$  sont calculées en appliquant la formule suivante :

$$d_{m,a} = \frac{\lambda_c}{4n_{m,a}}$$

Avec  $\lambda_c = 1680$  nm,  $n_m = 1,504$  et  $n_a = 1$ . Pour une couche magnéto-optique, cette valeur de  $\lambda_c$ , choisie dans la gamme des longueurs d'ondes utilisées dans le domaine des télécommunications (aux alentours de 1550 nm), donne la meilleure valeur de rotation Faraday et du facteur de mérite.

La figure II.17 montre la rotation Faraday et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de la structure représentée dans la figure II.16. Elle présente également la rotation Faraday d'une couche magnéto-optique de référence de largeur 2800 nm. La largeur de la couche magnéto-optique est égale à la somme des largeurs des couches magnéto-optiques de la structure représentée dans la figure II.16.

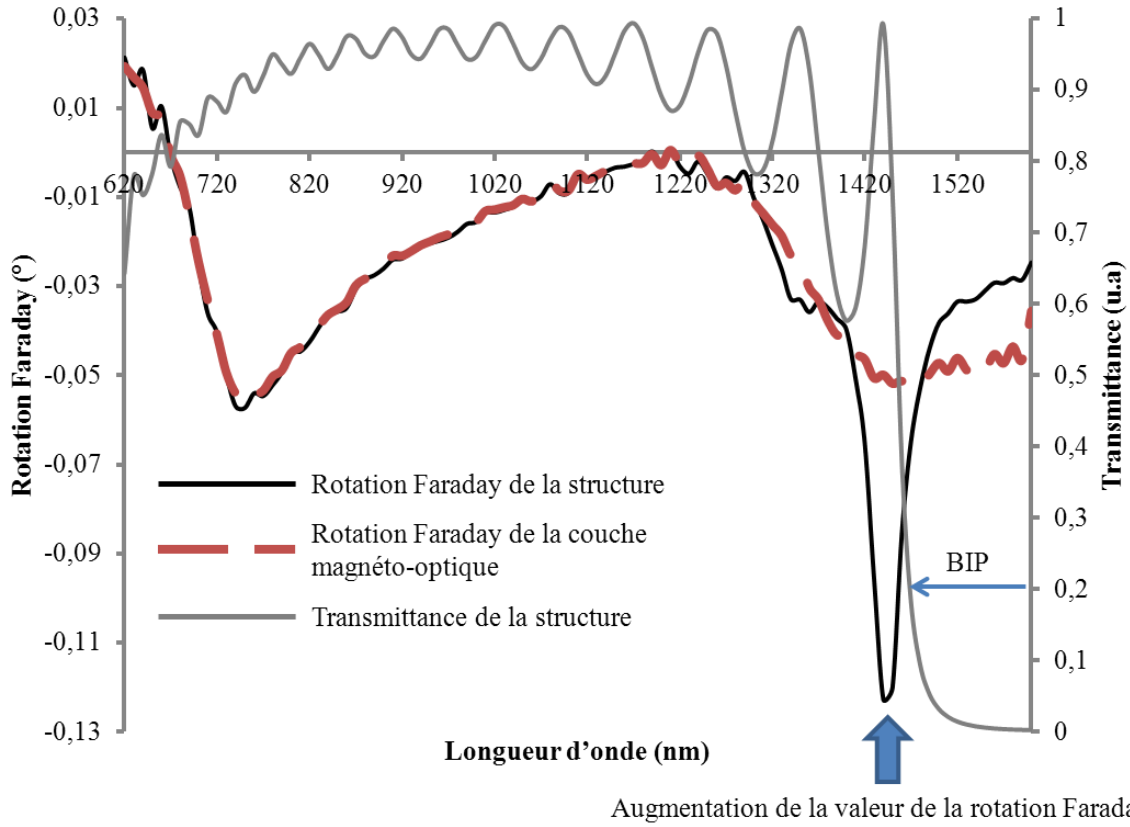


Figure II.17 : Comparaison de la rotation Faraday de la structure de la figure II.16 avec celle d'une couche magnéto-optique de référence.

Comme prévu pour une structure de ce type, l'augmentation de la valeur de la rotation Faraday est observée en bords de la BIP. Notons que dans la figure II.17 seul le bord inférieur est visible, une augmentation de la valeur de la rotation Faraday est également prévue en bord supérieur. A 1440 nm, la valeur de la rotation Faraday de la structure périodique étudiée ( $-0,123^\circ$ ) est augmentée de 2,5 fois par rapport à celle de la couche magnéto-optique de référence ( $-0,05^\circ$ ).

La figure II.18 montre l'ellipticité Faraday et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de la structure représentée dans la figure II.16. Elle présente également l'ellipticité Faraday de la couche magnéto-optique de référence.

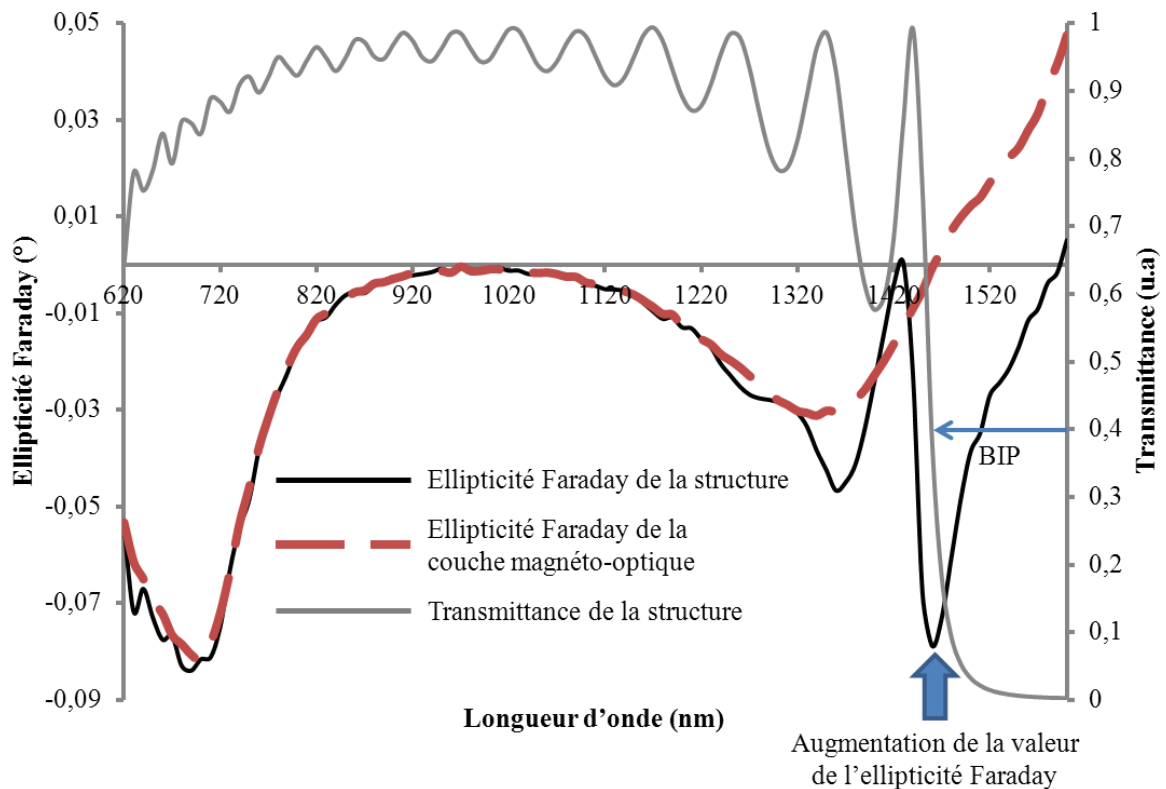


Figure II.18 : Comparaison de l'ellipticité Faraday de la structure de la figure II.16 avec celle d'une couche magnéto-optique de référence.

Comme dans le cas de la rotation Faraday, une augmentation de la valeur de l'ellipticité Faraday est observée en bord inférieur de la BIP.

#### II.4.2.2. Structure périodique 1D : magnéto-optique/air avec défaut

Pour la même position centrale de la BIP (1680 nm), afin d'améliorer la valeur du facteur de mérite, un défaut structurel est introduit à la structure périodique représentée dans la figure II.16. Le défaut consiste à modifier l'épaisseur de l'une des couches qui constituent la structure. Puis, on fait varier la position du défaut ainsi que sa nature (magnéto-optique ou air) afin de déterminer la meilleure valeur du facteur de mérite. La structure retenue alterne des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction, de largeur  $d_m$ , avec des couches d'air à bas indice de réfraction de largeur  $d_a$ . Elle comprend 20 couches et possède un défaut qui consiste à doubler une couche d'air à son bord (figure II.19).

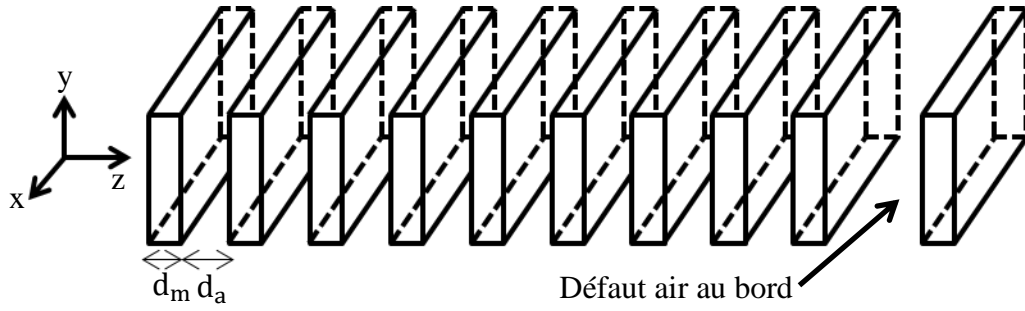


Figure II.19 : Structure périodique 1D formée de couches magnéto-optiques et de couches d'air avec un doublement de la couche d'air au bord de la structure.

Les largeurs  $d_m$  et  $d_a$  sont calculées en appliquant la formule suivante :

$$d_{m,a} = \frac{\lambda_c}{4n_{m,a}}$$

Avec  $\lambda_c = 1680$  nm,  $n_m = 1,504$  et  $n_a = 1$ .

La figure II.20 montre une comparaison de la valeur de la transmittance et de la réflexion en fonction de la longueur d'onde entre la structure périodique alternant des couches magnéto-optiques et des couches d'air (figure II.16) et la structure périodique alternant des couches magnéto-optiques et des couches d'air avec un défaut d'air à son bord (figure II.19).

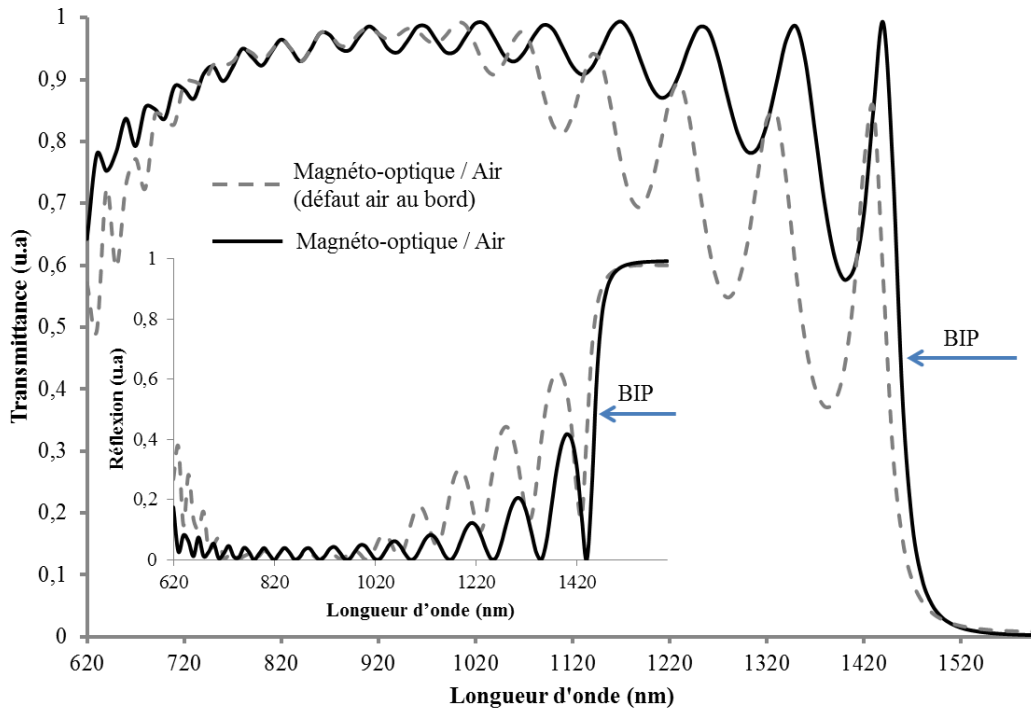


Figure II.20 : Transmittance et réflexion (en insert) en fonction de la longueur d'onde des structures périodiques représentées dans la figure II.16 et la figure II.19.

On observe une différence de transmittance et de réflexion entre les deux structures. D'après l'équation II.53, cette différence influe directement sur la valeur de l'absorption. En

outre, une comparaison entre la valeur de la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde des deux structures est représentée dans la figure II.21.

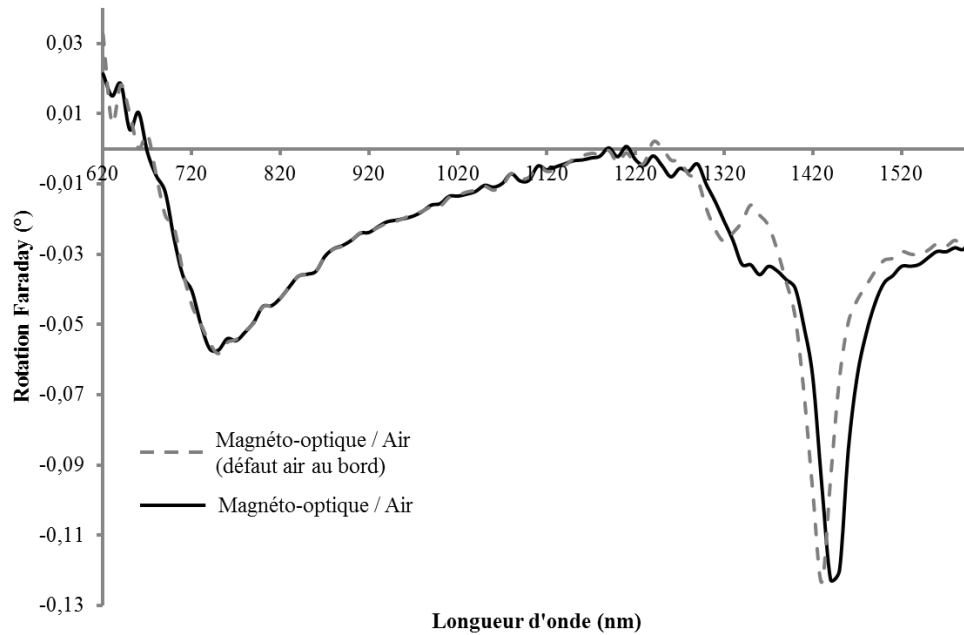


Figure II.21 : Comparaison de la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde entre la structure périodique représentée par la figure II.16 et la structure périodique représentée par la figure II.19.

Une légère différence entre les valeurs de la rotation Faraday des deux courbes est observée. Néanmoins, pour les deux structures, les valeurs maximales de rotation sont égales ( $-0,123^\circ$ ). Comme on le montrera plus loin, ces variations auront principalement un impact important sur la modification de la valeur du facteur de mérite.

#### II.4.2.3. Structure périodique 1D : défaut magnéto-optique en forme de microcavité

La structure considérée est constituée de 21 couches. Elle alterne des couches diélectriques à haut indice de réfraction de largeur  $d_h$  avec des couches d'air à bas indice de réfraction de largeur  $d_a$ . Une couche magnéto-optique à haut indice de réfraction de largeur  $d_m$  est insérée au milieu de cette structure (figure II.22).

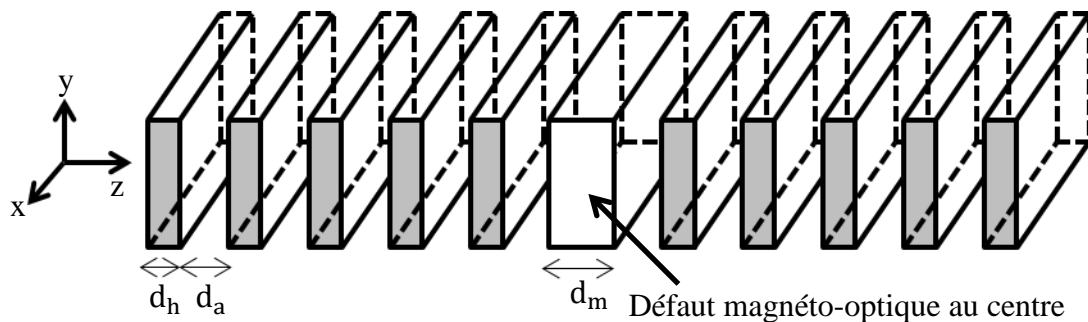


Figure II.22 : Structure périodique 1D formée de couches diélectriques et de couches d'air avec un défaut magnéto-optique au milieu de la structure.

Les largeurs  $d_h$  et  $d_a$  sont calculées en appliquant les formules suivantes :

$$d_{h,a} = \frac{\lambda_c}{4n_{h,a}}$$

$$d_m = \frac{\lambda_c}{2n_m}$$

Avec  $\lambda_c = 1440$  nm,  $n_h = 1,5$  et  $n_a = 1$  et  $n_m = 1,504$ .  $\lambda_c$  est choisie de sorte à avoir une augmentation de la valeur des effets Faraday à la même longueur d'onde que dans le cas de la structure périodique 1D représentée dans la figure II.16.

La figure II.23 montre la rotation Faraday et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de la structure représentée dans la figure II.22. Elle présente également la rotation Faraday d'une couche magnéto-optique de référence de largeur 478,7 nm. La largeur de la couche magnéto-optique est égale à largeur du défaut magnéto-optique introduit au milieu de la structure représentée dans la figure II.22.

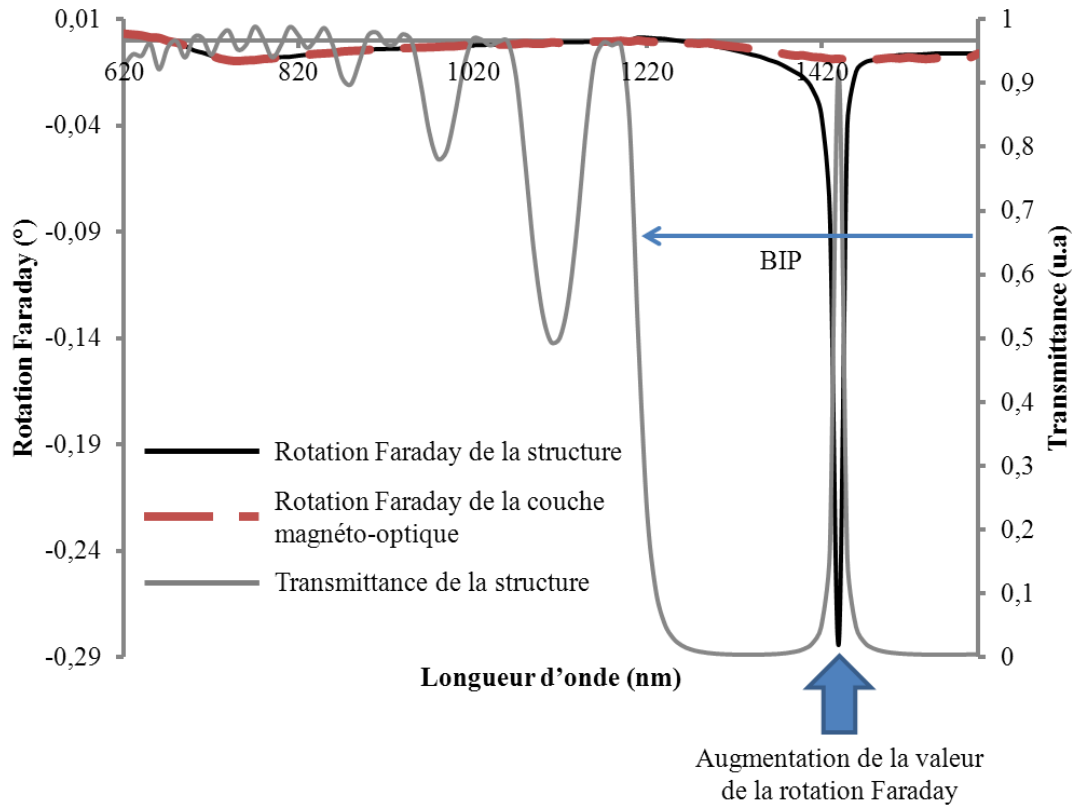


Figure II.23 : Comparaison de la rotation Faraday de la structure de la figure II.22 avec celle d'une couche magnéto-optique de référence.

Comme prévu pour une structure périodique de ce type, l'augmentation de la valeur de la rotation Faraday est observée au centre de la BIP. A 1440 nm, la valeur de la rotation Faraday de la structure microcavité étudiée ( $-0,284^\circ$ ) est augmentée de 33,3 fois par rapport à celle de la couche magnéto-optique de référence ( $-0,0085^\circ$ ).



La figure II.24 montre l'ellipticité Faraday et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de la structure représentée dans la figure II.22. Elle présente également l'ellipticité Faraday de la couche magnéto-optique de référence.

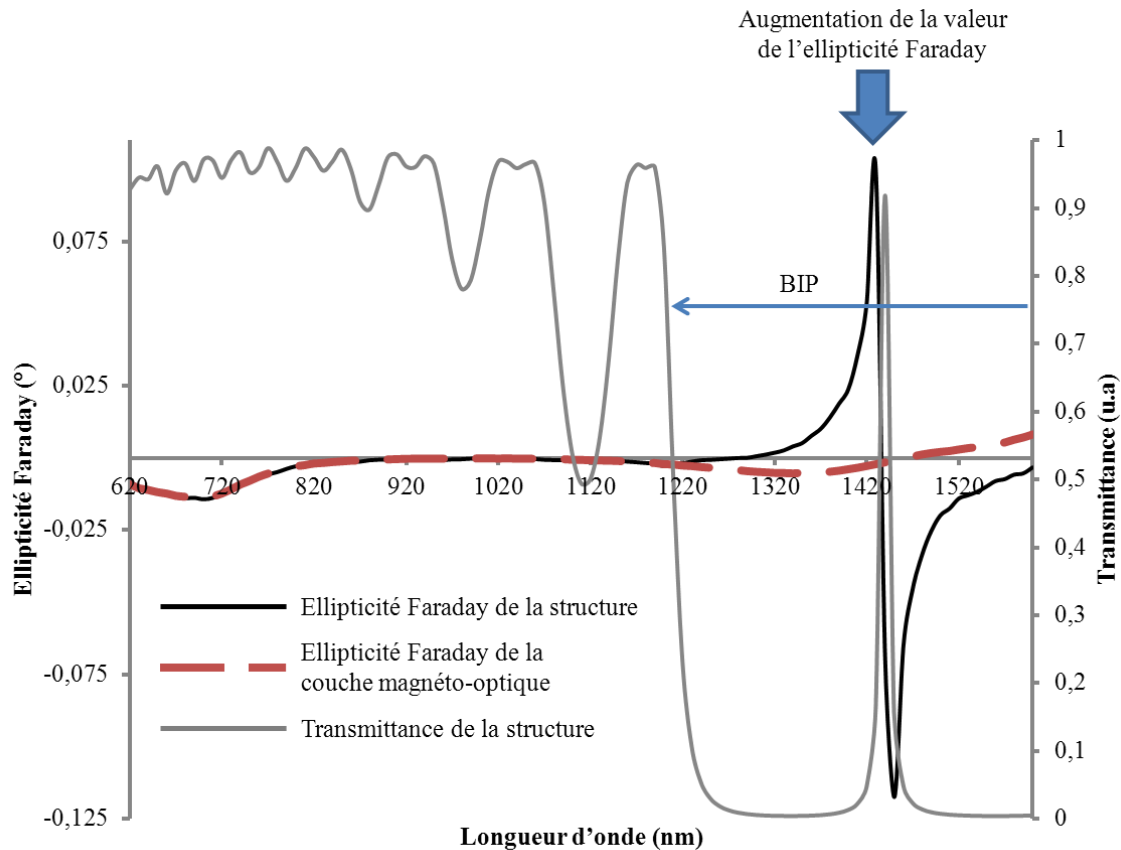


Figure II.24 : Comparaison de l'ellipticité Faraday de la structure de la figure II.22 avec celle d'une couche magnéto-optique de référence.

Comme dans le cas de la rotation Faraday, une augmentation de la valeur de l'ellipticité Faraday est observée au centre de la BIP.

#### II.4.2.4. Comparaison des résultats de simulation du facteur de mérite

La comparaison entre les facteurs de mérite est faite pour les trois structures détaillées précédemment ainsi que pour une couche magnéto-optique de référence d'épaisseur égale à 2800 nm. La figure II.25 représente les facteurs de mérite en fonction de la longueur d'onde des structures étudiées.

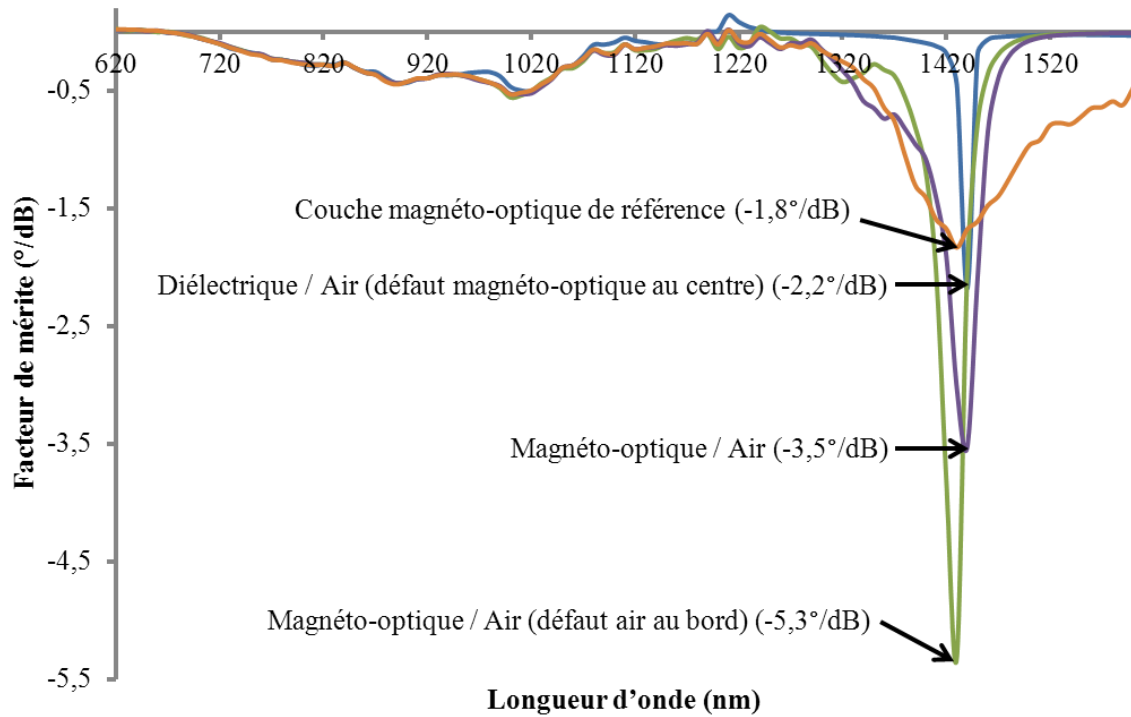


Figure II.25 : Représentation graphique des facteurs de mérite en fonction de la longueur d'onde des différentes structures étudiées.

En comparant les différents graphes, on remarque qu'une amélioration de la valeur de la rotation Faraday ne conduit pas nécessairement à une augmentation de la valeur du facteur de mérite. En effet, pour la structure microcavité, la valeur de la rotation Faraday au centre de la BIP est augmentée de 33,3 fois. Néanmoins, la valeur du facteur de mérite est augmentée uniquement de 1,2 fois. Notons que l'épaisseur totale du matériau magnéto-optique, contenu dans cette structure, est inférieure de 5,8 fois à celle de la couche magnéto-optique de référence. De plus, pour la structure périodique alternant des couches magnéto-optiques avec des couches d'air, la valeur de la rotation Faraday en bord inférieur de la BIP est augmentée de 2,5 fois. Néanmoins, la valeur du facteur de mérite est augmentée de 1,93 fois. Notons que l'épaisseur totale du matériau magnéto-optique, contenu dans cette structure, est égale à celle de la couche magnéto-optique de référence. De ce qui précède, on peut déduire qu'une optimisation des structures est nécessaire afin d'améliorer au mieux l'exaltation de la valeur du facteur de mérite. De ce fait, diverses structures sont simulées et cela en variant la position de la BIP, le nombre des couches ainsi que le type et la position du défaut. La meilleure valeur du facteur de mérite est obtenue en utilisant la structure détaillée dans le paragraphe II.4.2.2. Cette valeur est égale à -5,3°/dB, elle correspond à une augmentation de 2,9 fois soit une amélioration de 190% par rapport à la couche magnéto-optique de référence. Notons que l'épaisseur totale du matériau magnéto-optique, contenu dans cette structure, est égale à celle de la couche magnéto-optique de référence.

D'autres auteurs ont observé la variation de la valeur du facteur de mérite et cela en simulant et réalisant différentes structures périodiques 1D. Ainsi, S. I. Khartsev et A. M. Grishin [12] ont réalisé différentes structures microcavités qui alternent des couches de BIG avec des

couches de SGG. A une longueur d'onde égale à 750 nm, ces auteurs ont obtenu la meilleure valeur du facteur de mérite, égale à 7,6°/dB, en utilisant la structure  $[BIG/SGG]^4/BIG^2/[SGG/BIG]^4$ . Cette valeur correspond à une amélioration de 31% par rapport à une couche BIG de référence.

On peut conclure que ce qu'on gagne en rotation Faraday au niveau de la BIP après structuration 1D du matériau magnéto-optique composite, on ne le gagne pas forcément en facteur de mérite vu que l'absorption (voir figure I.26) joue un rôle prépondérant dans la détermination de la valeur de ce dernier.

## II.5. Conclusion

Ce chapitre a présenté tout d'abord la constitution de la structure CFC. Ensuite, la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D a été détaillée. Cette dernière a mis en évidence l'existence d'une BIP. En ses bords, la vitesse de groupe diminue progressivement ce qui implique un temps d'interaction plus élevé entre l'onde et la matière. Les distributions du champ électrique et de l'énergie électromagnétique pour des pulsations limites de la BIP ont été présentées. L'énergie électromagnétique se concentre dans la couche à haut indice de réfraction pour les pulsations limites en haut de la bande au-dessous de la BIP. L'effet de la structuration sur la modification de la valeur de rotation Faraday a été également discuté. Une exaltation de la valeur de rotation Faraday est prévue en bords de la BIP. En effet, la différence  $\Delta(K)$  entre les vecteurs d'onde  $K_g$  et  $K_d$  calculés respectivement pour une vibration circulaire gauche et une vibration circulaire droite est directement proportionnelle à la rotation Faraday. Ainsi,  $\Delta(K)$  est maximale pour les pulsations limites de la BIP.

Afin de pousser l'étude, on a simulé différentes structures périodiques qui alternent des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction avec des couches d'air à bas indice de réfraction dans le but de montrer l'effet de la structuration sur la modification de l'effet Faraday. Pour ces simulations, on a utilisé des valeurs mesurées expérimentalement pour l'indice de réfraction et le terme hors diagonal  $\epsilon_{xy}$  du matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C. Une forte exaltation de la valeur de rotation et d'ellipticité Faraday a été mise en évidence en bords et au centre de la BIP. En outre, après modalisation de la structure, une augmentation de la valeur du facteur de mérite a également été démontrée. Finalement, on note que même si on exalte fortement la valeur de la rotation Faraday, une modification similaire de la valeur du facteur de mérite est difficile à atteindre.

---

### **III. Elaboration et caractérisation des cristaux magnéto-photoniques 3D**

---

Ce chapitre traite de la procédure d'élaboration et des techniques de caractérisation optique et magnéto-optique des cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D. Il est divisé en trois parties principales et une conclusion qui résume son contenu.

La première partie présente les méthodes les plus utilisées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D. Elle développe principalement la méthode du dépôt vertical, technique d'auto-arrangement utilisée pour l'élaboration des opales artificielles au cours de ce travail.

La deuxième partie détaille la procédure d'élaboration, adaptée au cours de ce travail, des cristaux photoniques et magnéto-photoniques. Elle présente également des informations sur le matériau utilisé pour la fabrication des opales directes ainsi que des informations sur le procédé sol-gel et les ferrofluides utilisés pour la fabrication des opales inverses et inverses dopées.

La dernière partie concerne la caractérisation optique et magnéto-optique des échantillons réalisés. Elle explique principalement le fonctionnement des bancs optiques de mesure utilisés pour la caractérisation des échantillons et présente les différents moyens pour la détermination de la transmittance et des effets Faraday.

#### **III.1. Revue des méthodes de fabrication des cristaux photoniques 3D**

Diverses techniques ont été utilisées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D. La périodicité de la structure cristalline peut varier de quelques centaines de nanomètres pour des applications dans le domaine de l'optique visible à quelques microns pour celles opérant dans le domaine proche infrarouge. En principe, l'utilisateur désire une technique efficace, facile à mettre en œuvre, à faible coût et qui produit des structures reproductibles de bonne qualité dans un délai raisonnable.

Les techniques les plus utilisées sont celles basées sur la lithographie et l'auto-arrangement. Cette dernière conduit à la préparation des opales artificielles. A ces techniques s'ajoute la polymérisation à deux photons et la lithographie holographique, récemment introduites et également prometteuses. D'autres méthodes de fabrication comme la technique de gravure par faisceaux d'ions focalisés [91], la manipulation nanorobotique [92] ou encore les technologies de structuration directe par laser [93] sont continuellement développées et présentent des résultats intéressants.

Nous abordons tout d'abord les techniques de lithographie.

### III.1.1. Lithographie

Les méthodes lithographiques utilisent des techniques développées dans le domaine de la microélectronique. La procédure débute par l'impression d'un motif bidimensionnel sur une résine déposée sur une couche d'un matériau à haut indice de réfraction, tel le silicium ou l'arséniure de gallium, par photolithographie ou lithographie par faisceau d'électrons. Le nom de la technique dépend de l'utilisation des photons ou des électrons pour imprimer le motif sur la résine [94-96]. Ensuite, le motif est transféré sur la couche par un processus de gravure. Pour fabriquer les cristaux photoniques 3D deux procédures ont été élaborées par Lin *et al* [97, 98] et Noda *et al* [38, 99].

Noda *et al* ont utilisé une technique de soudage par fusion [38, 99]. Une structure de base 2D constituée de barreaux parallèles est réalisée sur une plaquette d'arséniure de gallium (GaAs), en utilisant la lithographie par faisceau d'électrons, puis découpée (figure III.1.b). Ensuite, les deux moitiés contenant la structure 2D sont empilées face à face et soudées par fusion de façon à ce que les barreaux de la deuxième couche soient perpendiculaires à ceux de la première couche (figure III.1.c). Après, l'un des substrats de la structure fusionnée est éliminé (figure III.1.d). Le résultat est une structure 3D formée de deux couches. A ce stade, la plaquette est découpée et empilée de nouveau (figure III.1.e). Par contre, l'alignement de la structure est critique car les barreaux de la troisième couche doivent être parallèles à ceux de la première couche tout en étant déphasés d'une demi-période. L'alignement de la structure est réalisé grâce à une technique d'observation de la diffraction d'un faisceau laser. En appliquant cette technique, un empilement de 8 couches a pu être réalisé.

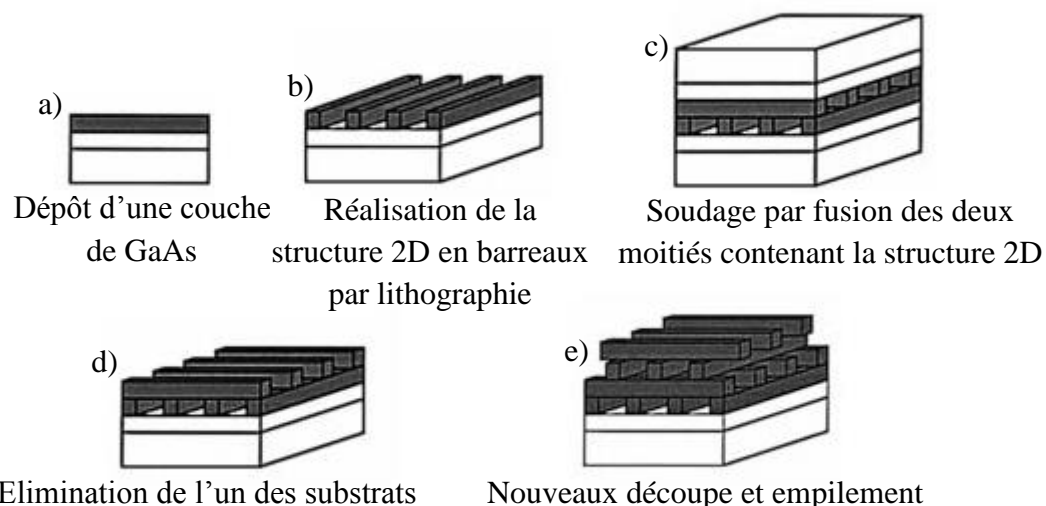


Figure III.1 : Représentation schématique de la technique utilisée par Noda *et al* pour la fabrication des cristaux photoniques 3D en utilisant la lithographie.

Lin *et al* ont développé une approche comprenant cinq étapes [97, 98]. D'abord, au sein de chaque couche, du dioxyde de silicium est déposé, structuré par photolithographie et gravé à la profondeur désirée. Les cavités réalisées sont ensuite couvertes par un dépôt de silicium polycristallin. La surface est ensuite polie par un mécanisme chimique. Finalement, le dioxyde de silicium est gravé en utilisant l'acide fluorhydrique. En appliquant cette approche à cinq étapes, Lin *et al* ont réalisé une structure formée de 4 couches ayant une périodicité sur

une surface de (1cm x 1cm). L'espacement entre deux tiges adjacentes est de  $4,2\ \mu\text{m}$ , la largeur de la tige est de  $1,2\ \mu\text{m}$  et l'épaisseur de la couche est de  $1,6\ \mu\text{m}$  [97].

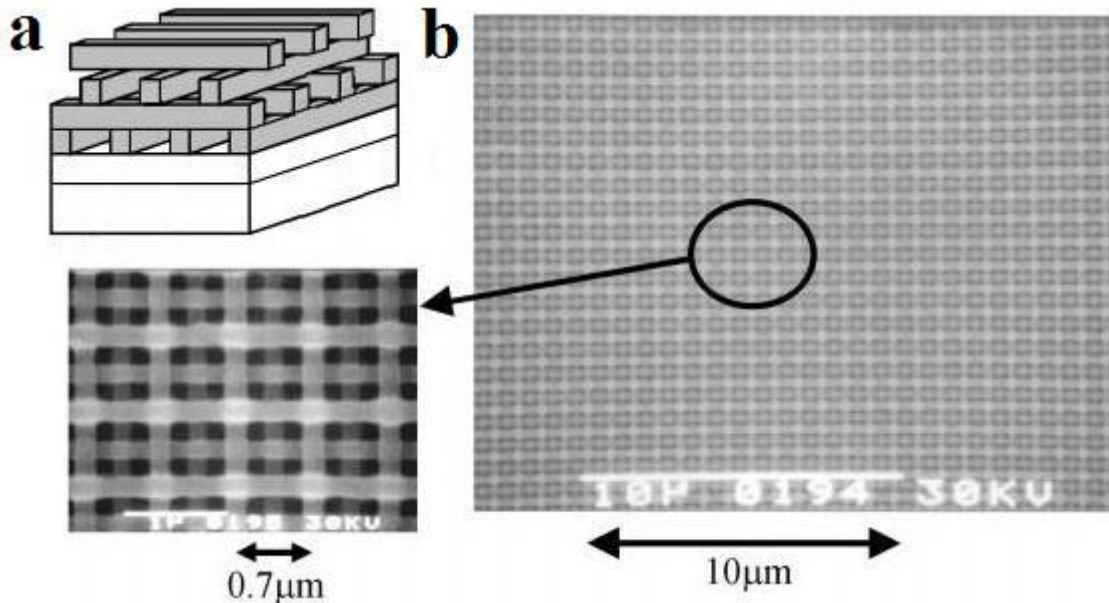


Figure III.2 : a) Représentation schématique d'un empilement « tas de bois » illustrant un cristal photonique 3D, b) Image MEB d'un cristal photonique 3D de GaAs fabriqué par Noda *et al* [38] en utilisant des techniques de traitement avancées.

Les méthodes lithographiques ont été les premières à produire des structures 3D présentant une BIP dans le spectre proche infrarouge et cela en se basant sur une technique d'empilement appelée « tas de bois » [38, 97]. La figure III.2 montre une représentation schématique de cet empilement ainsi qu'un exemple d'une image MEB de la surface d'un cristal photonique 3D fabriqué par Noda *et al* [38] en appliquant cette technique d'empilage.

Les méthodes lithographiques sont polyvalentes en termes de symétrie de la structure réalisée et permettent l'introduction des défauts linéaires impératifs pour certaines applications [38]. Néanmoins, ces technologies sont coûteuses et longues [100].

### III.1.2. Auto-arrangement

Les méthodes d'auto-arrangement sont les techniques les plus utilisées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D [17, 19, 31, 101-103]. Ces méthodes sont basées sur la tendance naturelle des particules monodisperses colloïdales à s'auto-assembler en réseaux ordonnés. Ces arrangements sont appelés opales artificielles à cause des ressemblances avec les pierres précieuses. Initialement les opales artificielles ont été fabriquées par sédimentation. Plus tard, d'autres méthodes, comme le dépôt vertical, ont été développées pour surmonter certaines limitations de la sédimentation. Ce qui a rendu l'auto-arrangement si populaire est la disponibilité de certaines méthodes bien établies et peu coûteuses pour la synthèse des particules monodisperses colloïdales de silice ou d'autres polymères [104-106]. De plus, le processus de croissance des opales artificielles ne nécessite aucune instrumentation ou technique coûteuse. Le faible contraste d'indice de réfraction, la difficulté d'obtenir autre que des structures CFC, ou de contrôler les défauts désirables ou indésirables sont parmi les

limitations possibles de l'auto-arrangement [107]. Une solution pour augmenter le contraste d'indice de réfraction des opales artificielles est d'infiltrer leurs pores avec des matériaux à haut indice de réfraction et ensuite dissoudre la structure initiale pour obtenir une nouvelle structure appelée opale inverse. De cette façon, pour obtenir des structures susceptibles de présenter une BIP, un certain nombre de matériaux à contraste d'indice de réfraction suffisamment élevé, telles le silicium [39], le germanium [108] et la stibine [109] ont été infiltrés dans les opales artificielles.

Dans ce qui suit, une description concise des méthodes d'auto-arrangement sera présentée en détaillant principalement la technique du dépôt vertical.

### III.1.2.1. Sédimentation

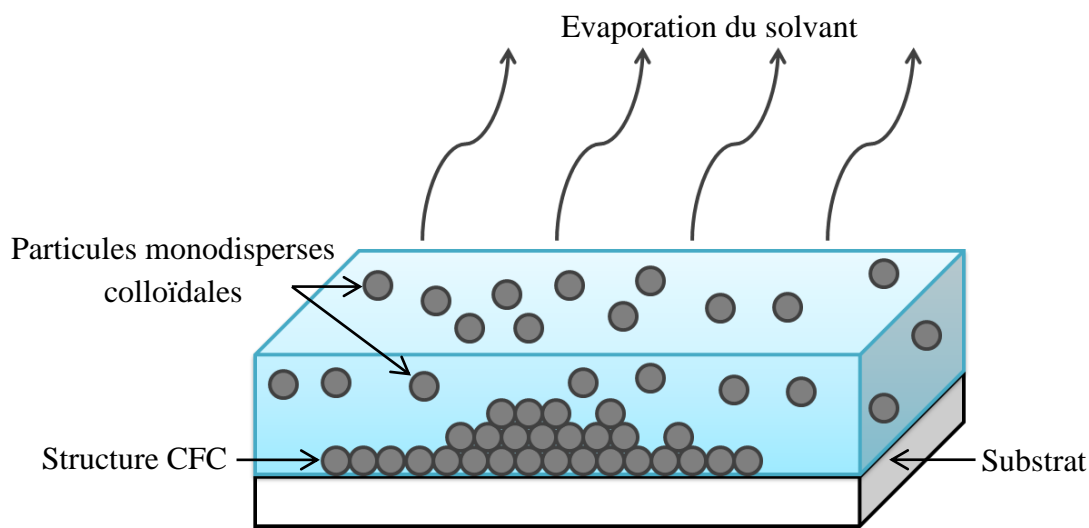


Figure III.3 : Représentation schématique de la sédimentation.

La sédimentation (figure III.3) est la méthode la plus simple de l'auto-arrangement. Expérimentalement, une suspension colloïdale aqueuse à concentration définie est laissée au repos [110]. Selon leur densité, leur taille et conformément à la relation de Stokes [111], les particules monodisperses colloïdales sédimentent du fait de la gravité et s'auto arrangent en un empilement CFC. Le solvant est alors éliminé par évaporation. A ce stade les microbilles ne sont pas au contact les unes des autres, mais séparées par des ponts de molécules de solvant. L'opale est alors traitée thermiquement afin d'éliminer l'eau.

La méthode de sédimentation conduit à la fabrication des structures CFC compactes qui possèdent une bonne résistance mécanique [112]. Néanmoins, ce procédé est particulièrement lent et peut durer quelques semaines. En outre, l'épaisseur du dépôt ne peut pas être contrôlée et la manipulation de l'échantillon est difficile [110, 113]. Egalement, les échantillons fabriqués par sédimentation ne sont pas parfaitement homogènes et présentent des défauts ponctuels, des dislocations et des défauts d'empilement [114, 115]. De plus, le succès de cette technique dépend de la taille des particules employées ainsi que de la différence de leur densité avec celle du solvant. En effet, si les particules sont trop petites ou leur densité relative trop faible, la sédimentation ne peut pas se produire. Inversement, si les particules

sont trop grosses ou leur densité relative trop importante, leur vitesse de sédimentation sera plus grande que la vitesse de cristallisation et un sédiment désorganisé sera alors obtenu.

### III.1.2.2. Centrifugation

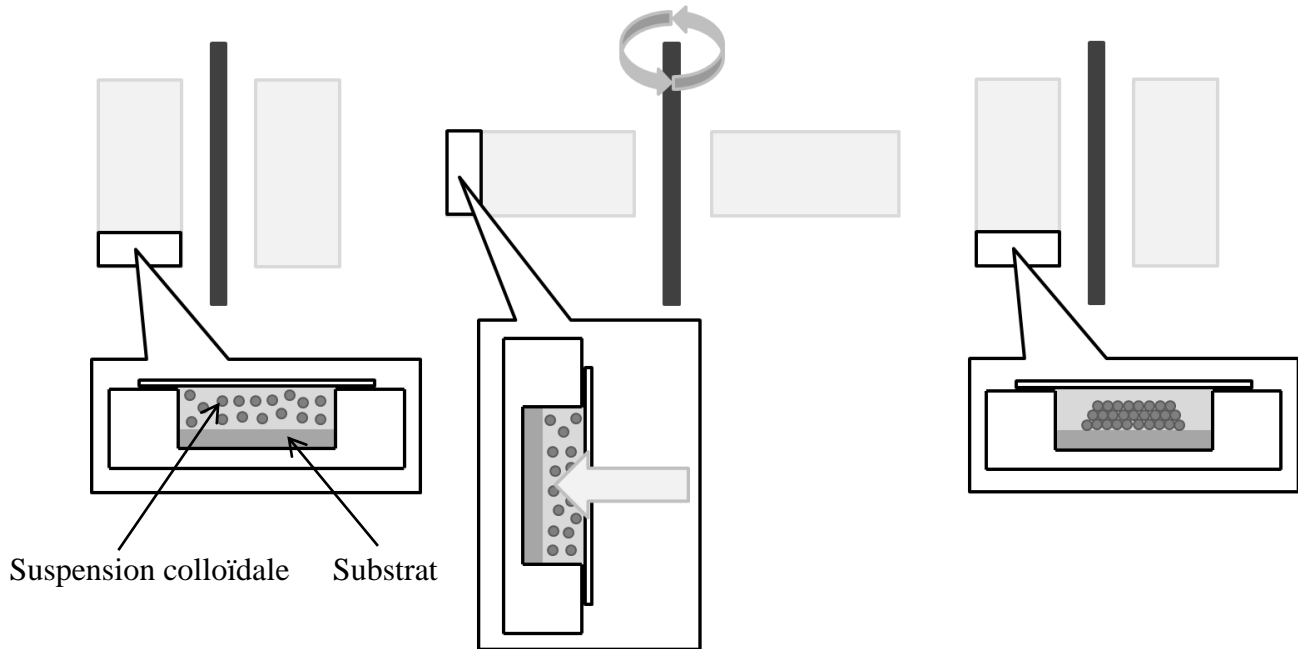


Figure III.4 : Représentation schématique de la centrifugation.

La centrifugation [17] (figure III.4) consiste à placer les substrats dans la cavité de supports cylindriques contenant une suspension colloïdale de particules monodisperses. Les cavités sont fermées par des lames de verre. Ces supports sont placés au fond d'autres supports cylindriques creux fixés à l'axe de la centrifugeuse. Au repos, les supports sont orientés verticalement à cause de la gravité. Lorsque la centrifugeuse est en service, les supports s'orientent horizontalement, la force centrifuge est plus importante que la gravité et gouverne la sédimentation de la suspension colloïdale. A la fin de la centrifugation, les supports se réalignent verticalement et une opale d'épaisseur uniforme est formée sur chaque substrat. En raison de la forme géométrique typique des supports, l'arrangement résultant est épais, de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ .

### III.1.2.3. Dépôt vertical

Parmi les méthodes d'auto-arrangement, le dépôt vertical (figure III.5), introduite en 1999 par Jiang *et al* [116], est devenue la plus répandue pour la fabrication des cristaux photoniques 3D à base d'opales artificielles.



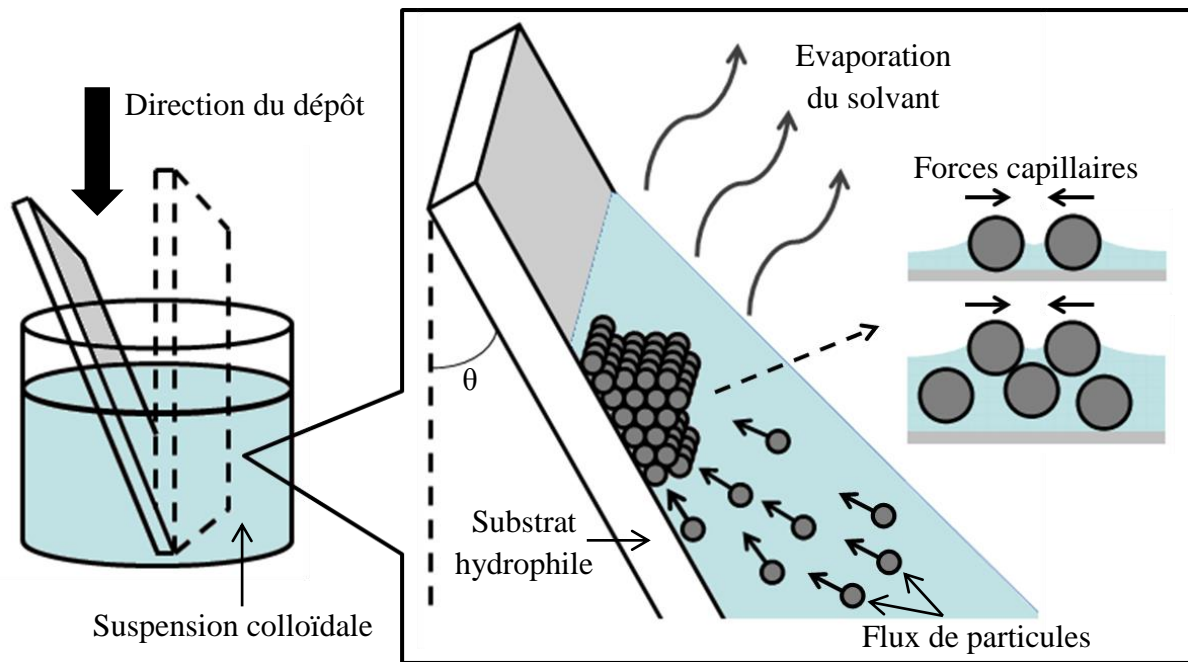


Figure III.5 : Représentation schématique du dépôt vertical.

Expérimentalement, un substrat, généralement de verre, est introduit dans un bécher sous chauffage contenant une suspension colloïdale de particules monodisperses dans un solvant, généralement l'eau. Un ménisque se forme à la surface de contact entre le substrat, la solution liquide et l'air. La croissance cristalline commence au niveau du ménisque au point où l'épaisseur de ce dernier est inférieure à celle du diamètre des particules. Des ménisques se forment également entre les particules qui se précipitent vers le substrat hydrophile et qui s'attirent entre elles à cause des forces capillaires qui ont tendance à les auto-organiser en couches serrées. Le mouvement de convection entraîne les particules qui seront incorporées progressivement à la couche auto-arrangée. Sous des conditions appropriées concernant la concentration des particules dans la solution ainsi que le taux d'évaporation du solvant, plusieurs couches peuvent commencer à se développer au niveau du ménisque.

Généralement, une bonne croissance cristalline dépend de la concentration et de la taille des particules monodisperses, de la nature du solvant, de la température de chauffage ainsi que de la forme et de la procédure d'hydrophilisation du substrat [101].

Le long du dépôt, la température de chauffage doit être contrôlée afin de maintenir un taux d'évaporation constant dans la phase d'évaporation de l'eau. Lopez *et al* [117] ont établi une relation liant la température de chauffage optimale au diamètre des particules monodisperses. En effet, pour les particules ayant un petit diamètre, généralement inférieur à 705 nm, la meilleure croissance cristalline est obtenue pour une température de 45°C. Tandis que pour les particules ayant un diamètre plus élevé, généralement de l'ordre de 1000 nm, la meilleure croissance cristalline est obtenue pour une température de 50°C.

Après évaporation du solvant, des structures CFC sont déposées sur le substrat formant des opales artificielles. Afin d'obtenir des structures CFC bien organisées, le substrat ne doit pas être positionné verticalement dans la solution mais avec une certaine inclinaison  $\theta$  par rapport

à la verticale. Lopez *et al* [117] ont trouvé que l'inclinaison conduisant aux meilleurs résultats est de 20°. Ils ont trouvé également que la meilleure qualité optique est obtenue pour des concentrations volumiques comprises entre 0,05% et 0,4% en particules monodisperses dans le solvant.

Les avantages du dépôt vertical par rapport aux autres méthodes d'auto-arrangement se résument comme suit :

- procédure facile et peu coûteuse qui conduit généralement aux meilleurs résultats ;
- permet un bon contrôle de l'épaisseur de l'échantillon ;
- des échantillons de quelques centimètres carrés sont fabriqués en quelques jours ;
- comme l'opale est attachée sur un substrat, sa manipulation est facile ;
- plusieurs opales peuvent être fabriquées avec la même quantité de matière utilisée pour obtenir une opale par sédimentation ;
- comme les opales sont plus minces, les défauts sont plus faibles et l'infiltration des pores avec des matériaux à haut indice de réfraction est plus facile [118, 119]. Par exemple, pour le même ordre de grandeur du diamètre des microbilles de polystyrène (250 nm - 400 nm), l'épaisseur des opales inverses élaborées par le dépôt vertical est de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$  [19] tandis que celle des opales élaborées par centrifugation est de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$  [17].

### III.1.3. Polymérisation à deux photons

La photopolymérisation est une technique qui permet la transformation d'une résine liquide photosensible, notamment la SU-8 ou d'autres résines commerciales comme la SCR500, en un matériau polymère solide sous l'irradiation d'une source lumineuse. En particulier pour la polymérisation à deux photons (figure III.6.a), un photo-initiateur absorbe simultanément deux photons grâce à un processus d'absorption non linéaire appelé absorption à deux photons. Le photo-initiateur est ensuite dissocié en radicaux libres actifs qui réagissent avec les molécules de monomères pour former des radicaux monomères. Ces derniers réagissent avec d'autres molécules de monomères pour former des groupes actifs encore plus larges. Cette réaction en chaîne conduit finalement à la formation de polymères solides de macromolécules réticulées [120].

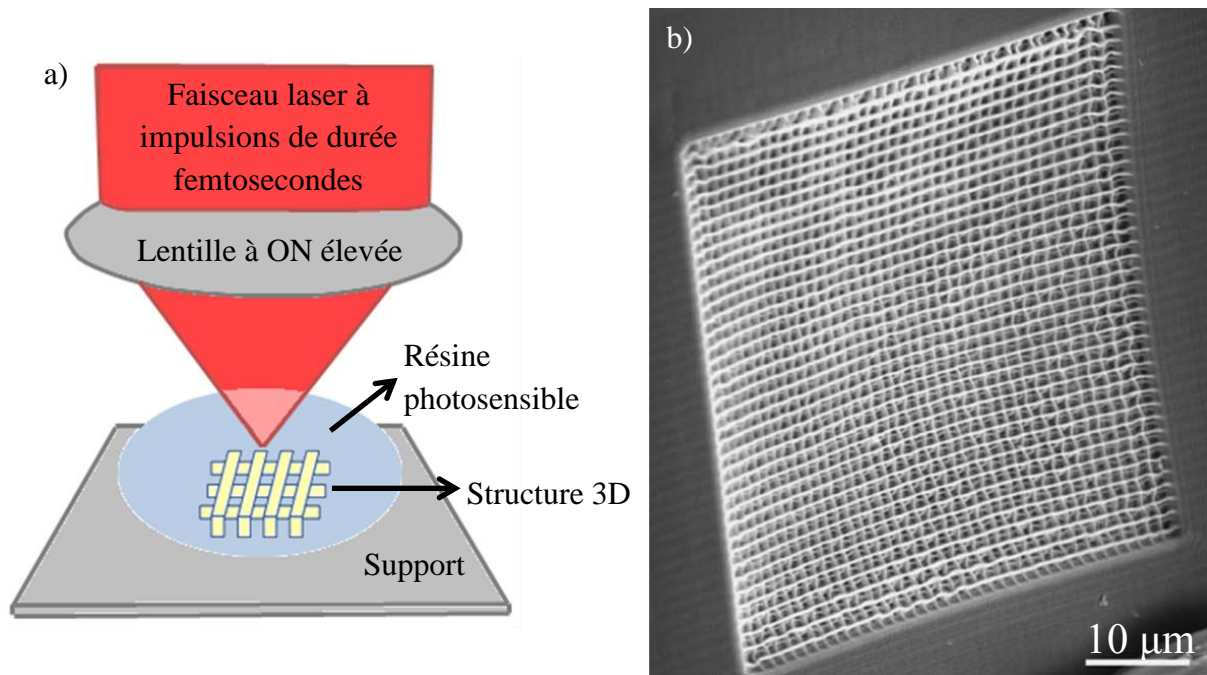


Figure III.6 : a) Principe de fabrication d'une structure 3D par la technique de polymérisation à deux photons, b) image MEB d'une structure 3D réalisée par M. Straub et M. Gu [121].

Le phénomène d'absorption simultanée de deux photons nécessite l'utilisation d'un faisceau laser focalisé ayant une intensité crête élevée, comme un laser à impulsions de durée femtosecondes. Pour un photo-initiateur de longueur d'onde d'absorption maximale  $\lambda_{\max}$ , la longueur d'onde du laser utilisé ( $\lambda_L$ ) doit satisfaire la condition  $\lambda_L/2 < \lambda_{\max} < \lambda_L$ . En effet, le respect de cette condition permet de balayer en 3D la focalisation du faisceau laser dans le volume de la résine et cela sans induire des réactions de polymérisations indésirables. De ce fait, la phase solide se forme uniquement dans la zone étroite focalisée où le phénomène d'absorption à deux photons se produit. La structure 3D finale est obtenue après lavage des parties non-polymérisées. La résolution de la technique de polymérisation à deux photons est gérée par la distribution spatiale des photons absorbés. Elle est contrôlée par l'ouverture numérique (ON) de la lentille de focalisation du faisceau laser. Néanmoins, la possibilité de diffusion des radicaux dans la résine ainsi que les contraintes mécaniques liées à la rigidité des polymères, sont les principaux facteurs qui limitent la résolution.

La figure III.6.b représente une image MEB d'un cristal photonique 3D réalisé par M. Straub et M. Gu [121], et cela en utilisant la technique de polymérisation à deux photons ( $\lambda_L = 540$  nm). Cette structure est composée de 40 couches où l'espacement entre deux couches consécutives est égal à 500 nm. Elle présente une BIP vers 1500 nm.

La polymérisation à deux photons permet de concevoir différentes symétries et distributions dans un temps relativement court. De ce fait, elle facilite la production à grande échelle.

### III.1.4. Holographie

La lithographie holographique est une technique récente et prometteuse [122]. Par polymérisation, une distribution périodique est obtenue dans une résine photosensible,

généralement de la SU-8, en l'exposant aux interférences créées par quatre faisceaux laser non coplanaires qui proviennent d'un laser pulsé de Nd-Yag (longueur d'onde égale à 355 nm). Ces faisceaux sont générés en divisant la sortie du laser ultraviolet deux fois et cela en utilisant des séparateurs de faisceau diélectriques. Leurs chemins optiques vers la cible sont de longueurs égales et ne contiennent aucune lentille ou autre composant optique de focalisation. Afin d'obtenir une structure CFC, la disposition géométrique nécessaire des quatre faisceaux laser est représentée sur la figure III.7.a. Les trois faisceaux extérieurs entourent symétriquement le faisceau central et chacun d'eux forme avec ce dernier un angle de  $38,9^\circ$ . La puissance et l'état de polarisation linéaire de chaque faisceau sont contrôlés par une lame demi-onde et un séparateur de faisceau polarisant. Finalement, les zones non exposées sont éliminées et une structure périodique 3D est fabriquée (figure III.7.b).

En utilisant cette technique, Campbell *et al* [122] ont fabriqué des structures micro-périodiques formées de 14 à 80 couches condensées ayant des épaisseurs entre 10  $\mu\text{m}$  et 60  $\mu\text{m}$ .

Les structures obtenues par lithographie holographique sont polyvalentes. La symétrie cristalline peut être modifiée en variant les angles entre les faisceaux laser (figure III.7.a). La forme des motifs périodiques dépend de la puissance et de la polarisation des faisceaux laser.

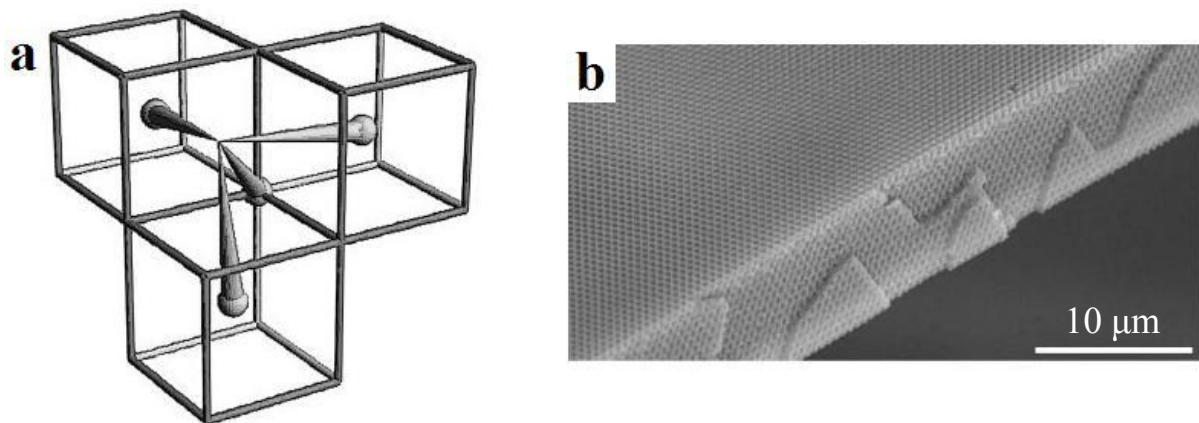


Figure III.7 : a) Représentation schématisée de la disposition géométrique des quatre faisceaux laser pour obtenir une structure CFC, b) Image MEB d'un cristal photonique 3D fabriqué par lithographie holographique [122].

La lithographie holographique, comme la polymérisation à deux photons, est coûteuse mais elle présente plusieurs avantages. D'abord, un cristal photonique 3D est fabriqué dans un temps relativement court. Ensuite, le nombre de paramètres modifiables offre une liberté pour concevoir différentes symétries et distributions. Enfin cette technique permet la production à grande échelle.

D'autres méthodes ont été développées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D. Par contre, ces dernières ne sont pas devenues aussi utilisables que les techniques présentées ci-dessus. Généralement, cela est dû à la difficulté de la mise en œuvre du processus de fabrication, ou à la difficulté de réaliser des échantillons de bonne qualité ou simplement car ces techniques sont toujours en cours de développement.

## III.2. Elaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D

Sur la base des éléments présentés dans le paragraphe précédent, le laboratoire a opté pour la méthode du dépôt vertical pour élaborer les cristaux magnéto-photoniques 3D. Elle a été choisie pour sa facilité et son faible coût de mise en œuvre, ainsi que pour la possibilité d'élaborer des opales directes de bonne qualité et d'épaisseur contrôlable en quelques jours. En outre, les interstices entre les microbilles peuvent être facilement infiltrés avec le matériau magnéto-optique composite développé au laboratoire LT2C ; ce qui permet, après traitement adéquat, sa structuration périodique 3D.

Ainsi, nous allons tout d'abord présenter le matériau utilisé pour la réalisation de l'opale directe. Ensuite, nous expliquons la voie sol-gel basse température, choisie pour l'infiltration des opales directes, et présentons les nanoparticules magnétiques utilisées pour le dopage du sol. Enfin, nous détaillons les étapes de la procédure expérimentale d'élaboration des cristaux magnéto-photoniques 3D.

### III.2.1. Matériau utilisé pour la réalisation de l'opale directe

Nishijima *et al* [17] ont fabriqué des opales inverses de silice en utilisant un procédé sol-gel basse température pour l'infiltration des opales directes constituées de microbilles de polystyrène. Ils ont également montré la possibilité d'utiliser ces opales pour des techniques de détection optique. En se basant sur ces travaux, le matériau utilisé pour l'élaboration de l'opale directe est le polystyrène (PS). Ce dernier est issu de la pétrochimie. Il est le polymère  $(CH_2-CH[Ph])_n$ , obtenu par la polymérisation des monomères de styrène  $CH_2=CH-Ph$  où Ph (phényle) désigne le groupe fonctionnel aromatiques de radical libre  $C_6H_5$ . D'autres matériaux peuvent être utilisés pour la fabrication de l'opale directe comme le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) [18, 19], l'oxyde de zinc (ZnO) [102, 123] ou la silice.

Des solutions constituées d'un mélange homogène d'eau et de microbilles de polystyrènes de diamètres respectifs de  $400 \pm 9$  nm,  $453 \pm 9$  nm,  $596 \pm 9$  nm,  $799 \pm 9$  nm et  $903 \pm 12$  nm, achetées chez Thermo Scientific, sont utilisées pour l'élaboration des opales directes. La densité des microbilles de polystyrène est égale à  $1,05 \text{ g/cm}^3$ . Leur indice de réfraction à 589 nm est égal à 1,59 tandis que la concentration en solide est égale à 1%. Le polystyrène est soluble dans la plupart des solvants aromatiques tels que le benzène, le toluène et les xylènes, les solvants chlorés tels que le chloroforme, le dichlorométhane, ainsi que dans l'acétate d'éthyle [17, 124, 125]. Il est insoluble dans les alcools tels que le méthanol, l'éthanol et l'acétone. Le polystyrène peut être également éliminé par calcination. Ce processus requiert des températures élevées de l'ordre de  $400^\circ\text{C}$  à  $500^\circ\text{C}$  [13-15, 126-128].

### III.2.2. Voie sol-gel

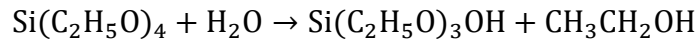
#### III.2.2.1. Définition et mécanisme

L'appellation « sol-gel » traduit le phénomène de transformation d'un liquide « sol » en un solide dit « gel ». Cette technique est une méthode permettant l'élaboration de matériaux à partir de précurseurs moléculaires en solution par une suite de réactions chimiques simples à

une température proche de la température ambiante. Utilisée à des températures relativement basses, elle est parfaitement compatible avec les technologies d'optique intégrée sur verre [129]. C'est l'une des raisons pour lesquelles elle est employée au laboratoire LT2C.

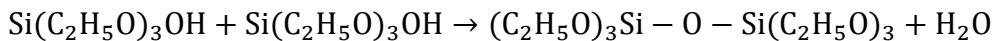
Les réactions chimiques à la base du procédé sont déclenchées lorsque les précurseurs métalliques sont mis en présence d'eau. Dans le cas de l'orthosilicate de tétraéthyle (TEOS) de formule brute  $\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4$  ces réactions sont les suivantes :

L'hydrolyse du TEOS pour donner un silanol (molécule contenant  $\text{Si} - \text{OH}$ ) :



Cette réaction peut être catalysée en milieu basique ou en milieu acide.

L'hydrolyse du silanol peut se poursuivre, mais plus probablement une réaction de condensation entre deux silanols aura lieu formant un pont d'oxygène joignant deux atomes de silicium ensemble. L'équation ci-dessous montre un exemple d'une réaction de condensation entre deux molécules silanols :



L'enchaînement des réactions d'hydrolyse et de condensation continue à ajouter des ponts -O-Si-O- et ainsi augmenter la chaîne. En effet, ces réactions se déclenchent simultanément en plusieurs endroits dans la solution conduisant à la formation de nombreuses chaînes d'oxyde de silicium/alcoxydes. La phase appelée « sol » est une dispersion colloïdale stable de ces particules au sein du solvant. Avec un certain temps, le « gel » est le résultat de l'agrégation progressive des particules en suspension dans le sol qui vont former petit à petit un réseau solide tridimensionnel infini interconnecté [130].

### III.2.2.2. Préparation de la solution sol-gel

Pour la préparation de la solution sol-gel (figure III.8), on mélange du tétraéthoxysilane (TEOS) de formule brute  $\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4$  de pureté 98% avec de l'éthanol absolu ( $\text{EtOH}$ ) de formule brute ( $\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$ ). Cette solution est agitée magnétiquement durant 5 minutes. L'étape suivante consiste à assurer un milieu acide en ajoutant goutte à goutte de l'acide chlorhydrique ( $\text{HCl}$ ) 0,1N au mélange  $\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4$  – Ethanol. En milieu acide ( $\text{pH} > 1$ ), la réaction d'hydrolyse est rapide et la réaction de condensation lente. La solution finale est agitée avec une vitesse modérée pendant 1h30 à 2h afin d'assurer le temps nécessaire pour établir la réaction d'hydrolyse et ainsi l'homogénéité de la solution sol-gel [130].

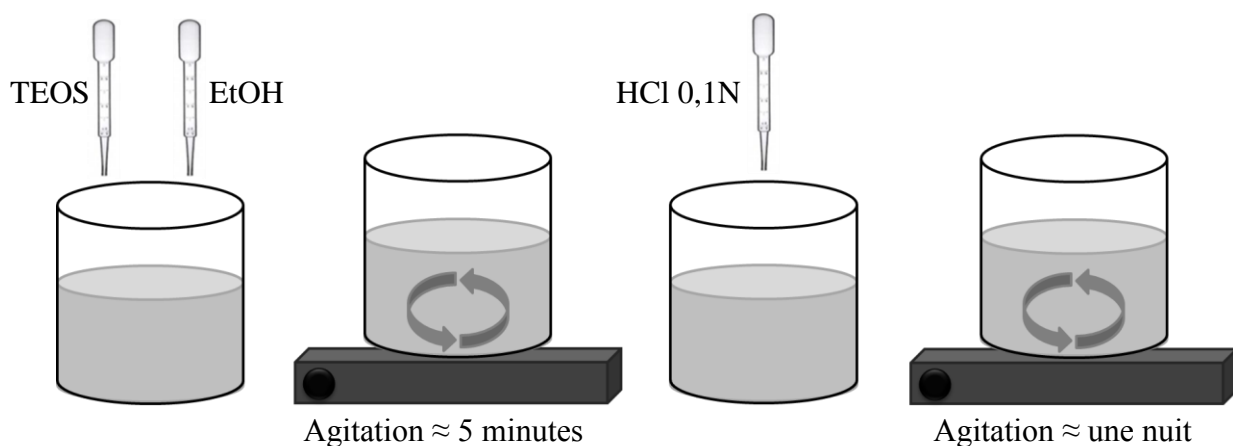


Figure III.8 : Représentation schématique de la procédure de préparation de la solution sol-gel.

Les quantités de chaque constituant de cette solution sont calculées d'après les équations suivantes [131] :

$$\frac{n_{\text{TEOS}}}{n_{\text{EtOH}}} = 0,5, \quad \frac{n_{\text{H}_2\text{O}}}{n_{\text{TEOS}}} = 2, \quad \frac{n_{\text{TEOS}}}{n_{\text{HCl}}} = 0,01$$

Avec  $n_{\text{TEOS}}$ ,  $n_{\text{EtOH}}$ ,  $n_{\text{H}_2\text{O}}$  et  $n_{\text{HCl}}$  respectivement les nombres de moles du tétraéthoxysilane, de l'éthanol, de l'eau et de l'acide chlorhydrique.

Les résultats de calcul sont groupés dans le tableau III.1 :

Produit chimique	Quantité (g)
$\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5\text{O})_4$	5,8
$\text{C}_2\text{H}_6\text{O}$	2,7
$\text{HCl}$ (0,1 N)	1

Tableau III.1 : Quantités en g des produits chimiques utilisés pour la préparation de la solution sol-gel.

### III.2.3. Nanoparticules magnétiques

#### III.2.3.1. Définition et présentation

Les nanoparticules magnétiques sont des particules constituées d'un matériau magnétique avec une taille nanométrique (3nm-30nm). Différents matériaux ont été synthétisés sous cette forme [132, 133] : magnétite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), maghémite ( $\gamma\text{Fe}_2\text{O}_3$ ), ferrite de cobalt ( $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ ), ferrite de manganèse ( $\text{MnFe}_2\text{O}_4$ ), ferrite de nickel ( $\text{NiFe}_2\text{O}_4$ ), ferrite de zinc ( $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$ ), ferrite de cuivre ( $\text{CuFe}_2\text{O}_4$ )... Dans ce travail, nous utilisons la ferrite de cobalt pour doper notre sol.

Les nanoparticules magnétiques peuvent être dispersées dans différents milieux. Lorsque les particules sont stabilisées dans un liquide porteur, la solution ainsi formée est appelée ferrofluide. Les particules magnétiques quasi sphériques peuvent être considérées comme de minuscules aimants permanents.

### III.2.3.2. Ferrofluides utilisés

Pour un dopage adéquat à l'aide des nanoparticules de ferrite de cobalt, la réalisation de solutions de ferrofluides requiert une attention particulière pour en assurer la stabilité. Les ferrofluides à base de ferrite de cobalt qui sont utilisés au cours de ce travail ont été mis au point par Sophie Neveu au laboratoire de Physicochimie des Electrolytes et Nanosystèmes interfaciaux (PHENIX). Le liquide porteur est l'eau.

Les ferrofluides à base de ferrite de cobalt sont préparés en milieu basique par contre leur conservation est difficile car ils réagissent avec l'air. Afin de les conserver, deux options sont envisageables. La première consiste à protéger la nanoparticule par un citrate, dans ce cas le ferrofluide est dit citraté. Tandis que la deuxième consiste à traiter la surface des nanoparticules par un acide ferreux pour la rendre inactive, les particules sont ensuite dispersées en milieu acide, dans ce cas le ferrofluide est dit acide. La procédure de réalisation de ce dernier se résume comme suit :

Les nanoparticules de ferrite de cobalt sont issues de la coprécipitation d'hydroxyde de fer(III)  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  et d'hydroxyde de cobalt(II)  $\text{Co}(\text{OH})_2$  en proportion stœchiométrique [134]. Après un chauffage à  $100^\circ\text{C}$  pendant deux heures, les nanoparticules obtenues sont transférées en milieu acide. Elles sont ensuite traitées par une solution de nitrate ferrique à ébullition afin de les protéger par une couche d'hydroxyde de fer amorphe qui permet d'obtenir des particules de ferrite de cobalt stables en milieu acide [135]. En effet, cette étape permet le mélange du ferrofluide avec notre solution sol-gel ayant un pH de l'ordre de 1,2. Finalement, après différents lavages à l'acétone et à l'éther, les nanoparticules sont dispersées dans l'eau distillée pour obtenir le liquide magnétique.

Le tableau III.2 regroupe les caractéristiques des différents ferrofluides utilisés au cours de ce travail.

<b>Ferrofluide (ferrite de cobalt)</b>	<b>Concentration volumique (%)</b>	<b>Diamètre des nanoparticules (nm)</b>	<b>pH</b>
S437A	12	$\approx 10$	Acide
S456AD	11	$\approx 10$	Acide
S456AD2	4,5	$\approx 10$	Acide
S464A		$\approx 10$	Acide
S246C		$\approx 10$	Basique

Tableau III.2 : Caractéristiques des ferrofluides acides et basiques utilisés au cours de ce travail.



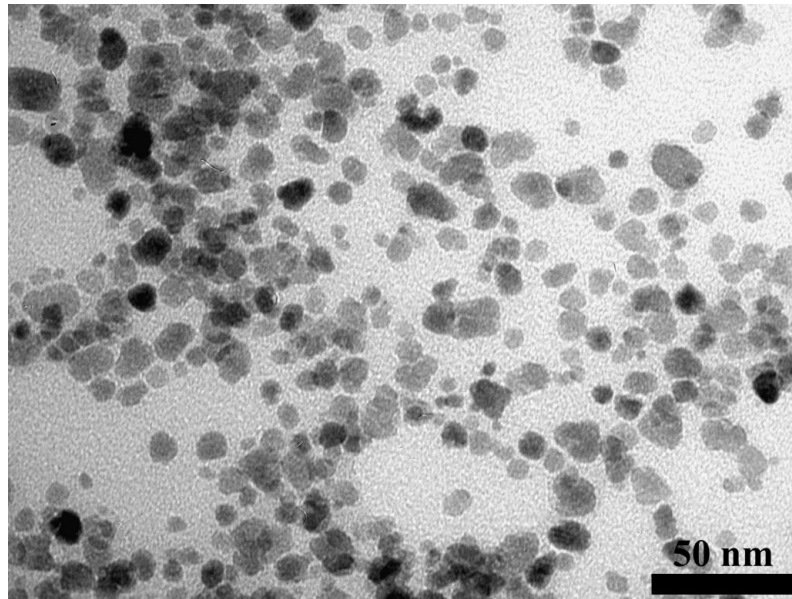


Figure III.9 : Images MET du ferrofluide acide S456AD.

La figure III.9 montre une photo, prise au microscope électronique à transmission (MET), de la dispersion des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans l'eau. Cette photo représente le ferrofluide acide S456AD et est prise en utilisant un grossissement de 93000 fois. Vu l'absence des agrégats, on peut confirmer que cette dispersion est assez homogène. Egalement, on constate que la forme des nanoparticules magnétiques est quasi-sphérique et que leur diamètre moyen peut être estimé à 10 nm.

#### III.2.4. Procédure d'élaboration

Le long de ce travail, les cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D sont fabriqués sur la base de la méthode du dépôt vertical. La procédure d'élaboration, représentée sur la figure III.10 est résumée par les étapes suivantes :

- hydrophilisation du substrat de verre ;
- élaboration de l'opale directe ;
- infiltration de l'opale directe par une matrice sol-gel non dopée ou dopée ;
- traitement thermique de la structure réalisée ;
- dissolution des microbilles de polystyrène.

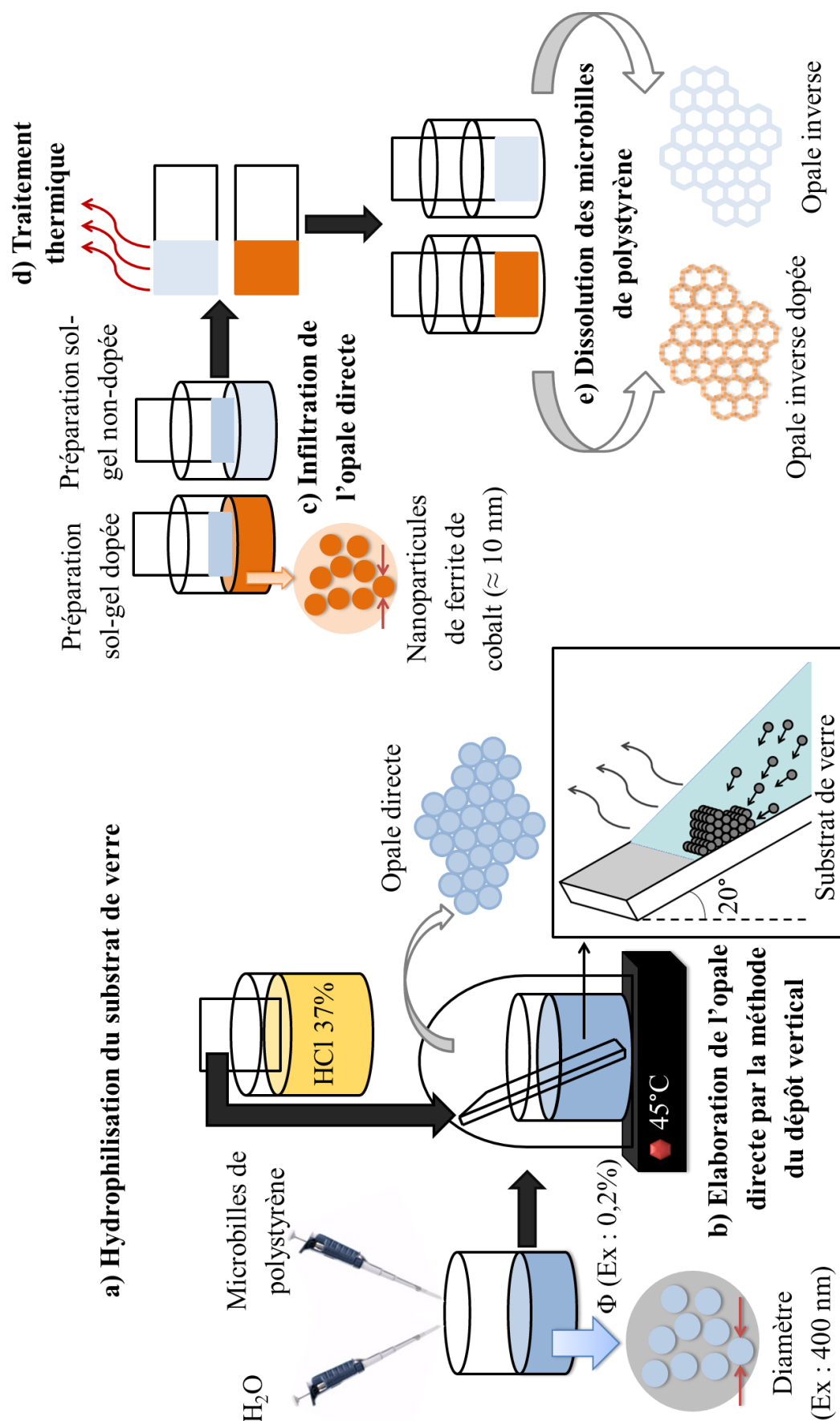


Figure III.10 : Représentation graphique de la procédure d'élaboration des cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D.

### III.2.4.1. Hydrophilisation du substrat de verre

Pour les différentes structures réalisées on utilise comme substrat du verre (Neyco B270) à deux faces polies de dimensions 25 mm x 75 mm x épaisseur 1,1 mm. L'étape de préparation du substrat (figure III.10.a) est assez importante. En effet, elle vise à rendre les deux faces du substrat parfaitement propres sans contamination et surtout plus hydrophiles ce qui permet à la suspension colloïdale de microbilles de polystyrène dans l'eau de s'étaler de manière régulière sur la surface du substrat et cela dans le but d'améliorer la qualité de l'auto-arrangement des microbilles de polystyrène [136]. En pratique, les substrats de verre sont placés dans une solution d'acide chlorhydrique (HCl) 37% pour une nuit afin de s'assurer de leurs hydrophilisation. Ensuite, ils sont rincés à l'eau distillée et séchés sous un flux d'azote.

### III.2.4.2. Elaboration de l'opale directe

Comme indiqué précédemment, l'élaboration des opales directes est faite par dépôt vertical (figure III.10.b) [31]. Le substrat de verre est introduit dans un bécher contenant une suspension colloïdale de microbilles de polystyrène dans l'eau. En se basant sur le travail de Lopez *et al* [117], l'angle  $\theta$  que fait le substrat avec l'axe vertical est fixé à 20°. La température est stabilisée à 45°C. Le temps d'évaporation dépend de la fraction volumique  $\Phi$  des microbilles de polystyrène dans la solution. L'épaisseur de l'opale directe est également contrôlée par modification de la fraction volumique des microbilles de polystyrènes dans la solution. Au cours de ce travail, les différentes fractions volumiques utilisées sont  $\Phi = 0,125\%$ ,  $0,2\%$  et  $0,225\%$  de microbilles de polystyrène dans l'eau.

Pour le choix de la taille des microbilles, nous avons utilisé la loi de Bragg définie par [17] :

$$\lambda_c = 2 \cdot D_{\text{sph}} \cdot \sqrt{\frac{2}{3}} \cdot \sqrt{[f_m \cdot n_m^2 + (1 - f_m) \cdot n_{\text{air}}^2]} \quad \text{Equation III. 1}$$

Avec  $\lambda_c$  la position centrale de la BIP,  $D_{\text{sph}}$  le diamètre des microbilles de polystyrène,  $f_m$  la fraction volumique occupée par la matrice solide, égale à 0,74 pour une opale directe et 0,26 pour une opale inverse,  $n_m$  et  $n_{\text{air}}$  respectivement l'indice de réfraction de la matrice solide et celui de l'air.

Cette loi indique donc que la position de la BIP est directement proportionnelle à la taille des microbilles. De plus, comme indiqué au chapitre II, le spectre de la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt présente deux zones où les valeurs sont maximales, respectivement aux alentours de 750 nm et 1550 nm [83]. En conséquence, pour couvrir les deux zones, des solutions commerciales de microbilles de polystyrène ayant des diamètres entre 400 nm et 900 nm sont utilisées.

### III.2.4.3. Infiltration de l'opale directe par une matrice sol-gel

Pour la fabrication des cristaux photoniques 3D, l'opale directe est infiltrée par une préparation sol-gel non-dopée, tandis que pour la fabrication des cristaux magnéto-photoniques 3D, l'opale directe est infiltrée par une préparation sol-gel dopée avec des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt (figure III.10.c).

Lorsqu'on ajoute les nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt à la solution sol-gel il faut faire attention à leur stabilité afin d'éviter la formation des agrégats et les phénomènes de sédimentation. En effet, cette étape est cruciale car la qualité du dopage du sol conditionne la bonne réalisation de l'imprégnation de l'opale directe. De ce fait, le ferrofluide est initialement agité pendant quelques minutes à l'ultrason avant d'être ajouté goutte-à-goutte à la préparation sol-gel (figure III.11.a). Afin d'homogénéiser le mélange obtenu, on procède également à l'agitation à l'ultrason pendant quelques minutes (figure III.11.b). Enfin cette solution, dite solution de dopage, est filtrée à  $0,2\ \mu\text{m}$  (figure III.11.c) et est agitée une troisième et dernière fois à l'ultrason (figure III.11.d). La solution de dopage est immédiatement utilisée pour infiltrer l'opale directe (figure III.11.e).

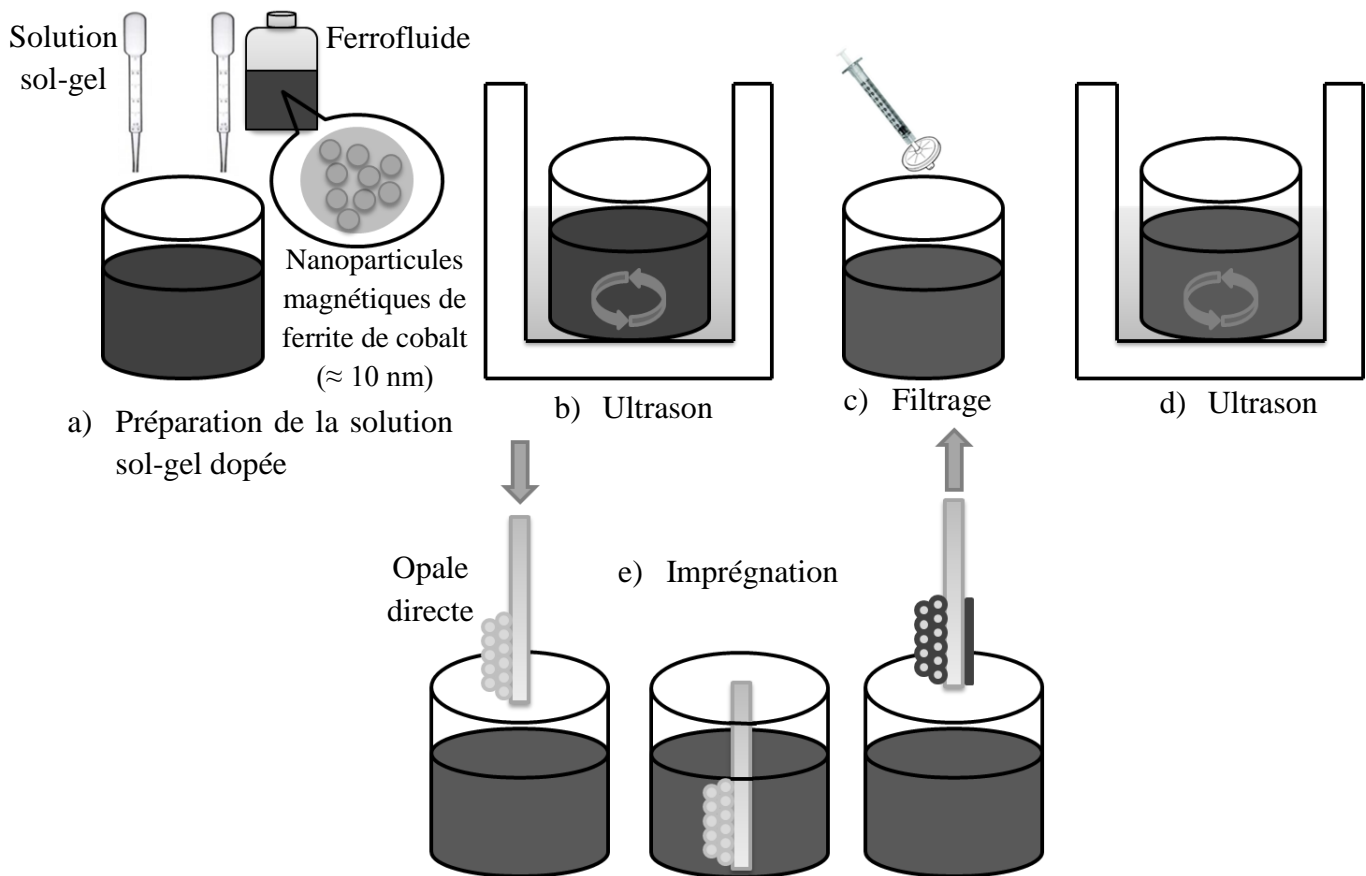


Figure III.11 : Procédé d'infiltration de l'opale directe par une solution sol-gel dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt.

L'opale directe est introduite dans la solution de dopage en utilisant un support contrôlable par moteur pas à pas. Le temps d'imprégnation ne dépasse pas quelques minutes. Cette opale est ensuite retirée à vitesse faible et constante. Au contact de l'air, l'évaporation graduelle du solvant accélère la réaction de polycondensation de la solution sol-gel ce qui conduit à sa gélification progressive.

#### **III.2.4.4. Traitement thermique de la structure réalisée**

Afin de garantir sa solidification, la structure réalisée est séchée dans un four à 90°C pendant 1 heure. Cette étape assure l'évaporation du solvant et ainsi la gélification totale de la solution sol-gel (figure III.10.d) [17].

#### **III.2.4.5. Dissolution des microbilles de polystyrène**

L'acétate d'éthyle est utilisé pour dissoudre le polystyrène de l'opale dopée [17]. Pour cela, l'opale est plongée dans un bécher contenant de l'acétate d'éthyle pendant une nuit afin de s'assurer de la dissolution complète des microbilles de polystyrène (figure III.10.e). La structure obtenue est un réseau tridimensionnel formé par des trous d'airs dans une matrice de silice dopée ou non par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt. Cette structure est appelée opale inverse.

### **III.2.5. Voie alternative à l'élaboration des cristaux photoniques**

Hatton *et al* ont développé une nouvelle approche pour la fabrication des opales inverses [19] afin de remplir de solution sol-gel les interstices entre particules de polystyrène au moment de leur auto-arrangement. Le principe de cette méthode consiste à rajouter à la suspension colloïdale de particules monodisperses de polystyrène dans l'eau une quantité de la solution sol-gel servant à la fabrication de la structure initiale par la technique de dépôt vertical. L'opale inverse est obtenue après calcination de la structure initiale à 500°C pendant 5h afin de solidifier la structure finale et éliminer les particules de polystyrène. Cette démarche conduit à la formation d'auto-arrangements homogènes, hautement ordonnés et sans défaut structuraux sur des largeurs considérables d'ordre centimétrique.

En se basant sur ces travaux, des modifications ont été appliquées sur la procédure d'élaboration des cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D, détaillée dans le paragraphe III.2.4, afin de minimiser les défauts structuraux et améliorer la qualité de nos opales inverses en termes d'homogénéité et de profondeur de la BIP.

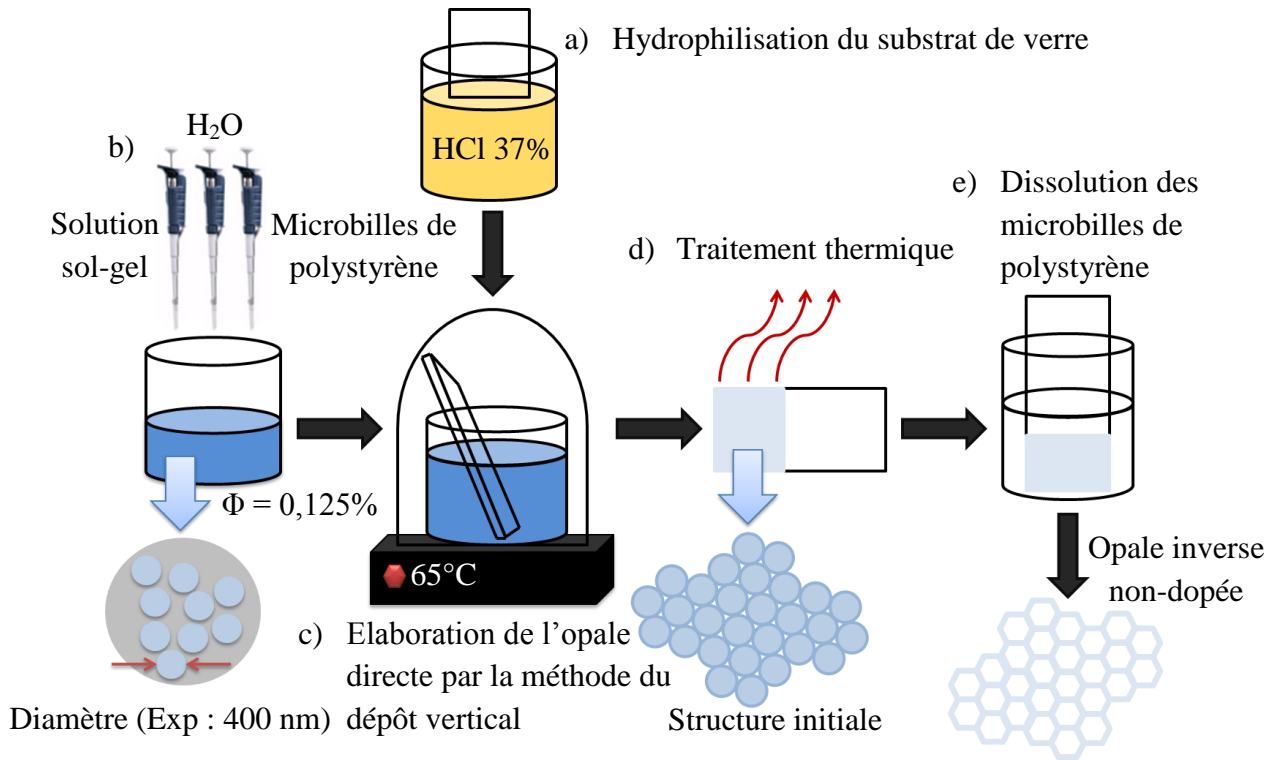


Figure III.12 : Elaboration des opales inverses non dopées en se basant sur les travaux de Hatton *et al* [19].

Expérimentalement, pour la fabrication des opales inverses non dopées, une quantité de solution sol-gel est rajoutée au mélange contenant la solution colloïdale des microbilles de polystyrène dans l'eau. Pour une solution de microbilles de polystyrène de 4 ml concentrée à 0,125% on rajoute 0,026 ml de la solution sol-gel (figure III.12.b). La structure initiale formée de l'auto-arrangement des microbilles de polystyrène est fabriquée en utilisant la technique du dépôt vertical à une température constante de 65°C (figure III.12.c). Après réalisation du dépôt, la structure subit un traitement thermique à 90°C pendant 1 heure afin d'évaporer le solvant et assurer sa solidification (figure III.12.d). Finalement, l'opale inverse est obtenue après dissolution des microbilles de polystyrène en utilisant l'acétate d'éthyle (figure III.12.e).

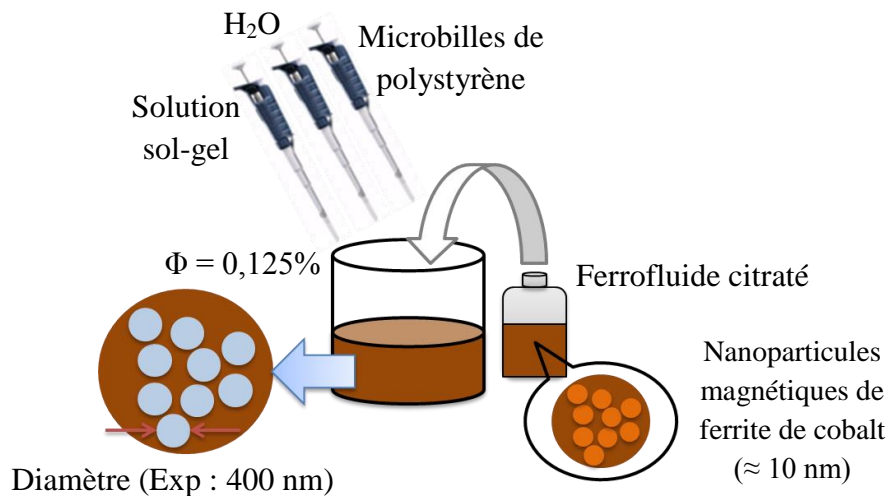


Figure III.13 : Elaboration des opales inverses dopées en se basant sur les travaux de Hatton *et al* [19].

Pour la fabrication des opales inverses dopées, le même cheminement (figure III.12) est suivi en rajoutant au mélange contenant les microbilles de polystyrène, l'eau et la préparation sol-gel, une certaine quantité d'un ferrofluide citraté à base de ferrite de cobalt (de l'ordre de 0,052 ml) (figure III.13). L'utilisation d'un ferrofluide acide n'est pas possible car il se déstabilise dans le mélange. En effet, la solution contenant 3,5 ml d'eau et 0,5 ml de la solution commerciale des microbilles de polystyrène à un pH de 5,5. Pour être stable les ferrofluides acides doivent restés dans une solution de pH faible. Par contre les ferrofluides citratés sont stables pour un pH de 5,5 ; d'où la nécessité d'utiliser un ferrofluide citraté.

En utilisant des microbilles de polystyrène ayant un diamètre de 400 nm ou de 450 nm, les opales inverses non dopées, élaborées en s'inspirant des travaux de Hatton *et al*, sont meilleures en termes d'homogénéité et de minimisation des défauts structuels que ceux fabriquées par la méthode détaillée au paragraphe III.2.4. Néanmoins, nous n'avons pas obtenu ces résultats en utilisant des microbilles de polystyrène de diamètres supérieures.

La figure III.14 montre une image MEB d'une opale inverse respectivement élaborée par la méthode détaillée au paragraphe III.2.4 (figure III.14.a) ainsi que par la méthode s'inspirant des travaux de Hatton *et al* (figure III.14.b). Le diamètre des microbilles de polystyrène utilisées est respectivement égal à 450 nm et 400 nm. En outre, la figure III.14.c montre la transmittance en fonction de la longueur d'onde pour ces deux types d'opales inverses. Par une simple comparaison des images MEB, on constate clairement une différence importante d'homogénéité et de répartition des défauts structuels entre les deux approches d'élaboration. Ces différences structurelles impactent manifestement la transmittance des deux opales inverses. En effet, dans le cas de l'opale inverse élaborée en s'inspirant des travaux de Hatton *et al*, le niveau de la transmittance est plus élevé, avec une diffusion moins importante. La BIP est ainsi plus profonde que dans le cas de l'opale élaborée par la méthode détaillée au paragraphe III.2.4.

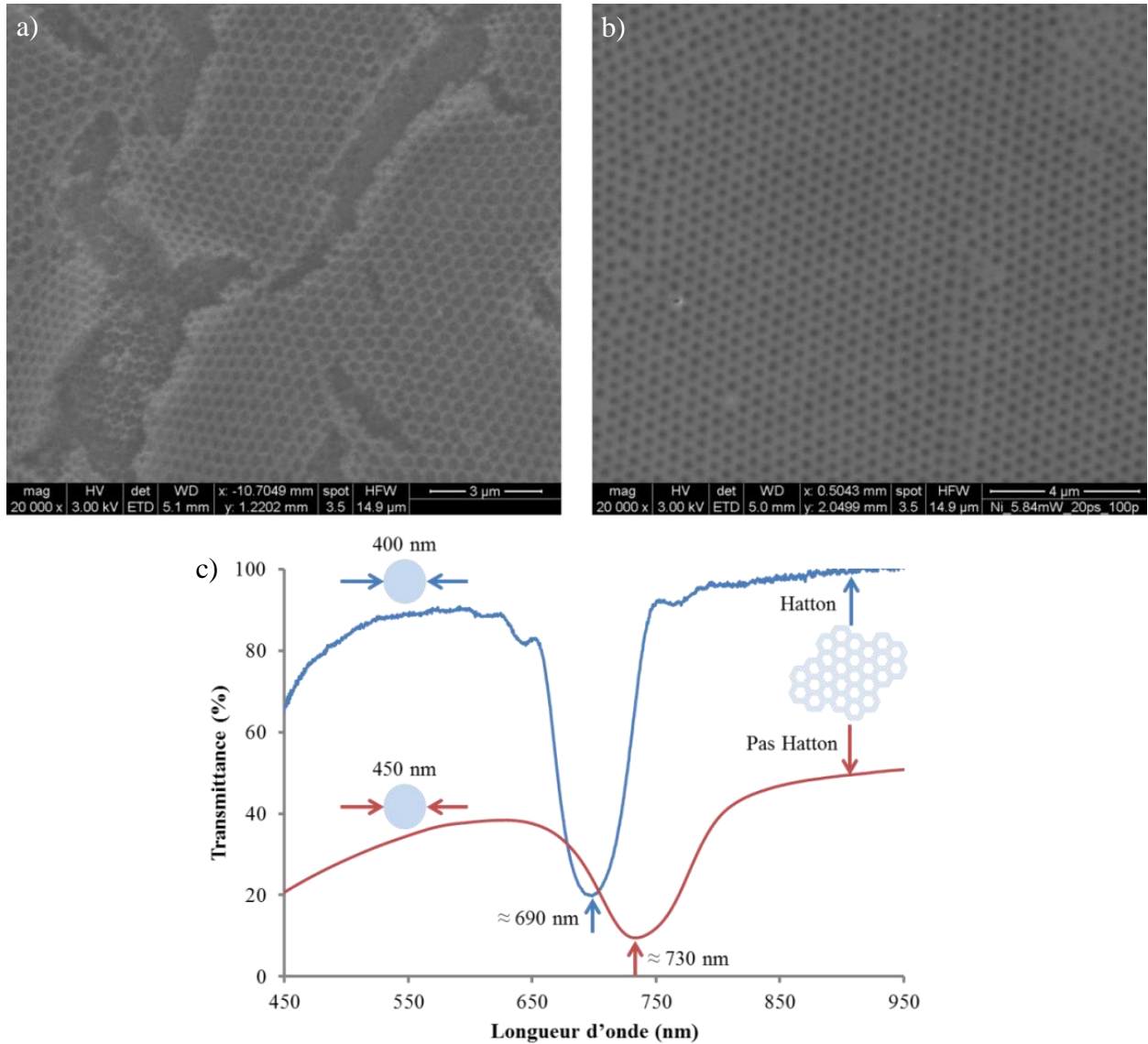


Figure III.14 : Image MEB d'une opale inverse élaborée a) par la méthode détaillée au paragraphe III.2.4, b) en s'inspirant de travaux de Hatton *et al*, c) transmittance en fonction de la longueur d'onde de ces deux structures.

En revanche, la qualité des opales inverses dopées élaborées en s'inspirant des travaux de Hatton *et al* est non satisfaisante. En effet, la présence du ferrofluide citraté dans la solution colloïdale des microbilles de polystyrène dans l'eau perturbe le phénomène d'auto-arrangement des microbilles de polystyrène lors du dépôt vertical, ce qui conduit à des arrangements et structures non homogènes. Pour illustrer cela, la figure III.15 montre une image MEB d'une opale inverse dopée élaborée en s'inspirant des travaux de Hatton *et al*. Le diamètre des microbilles de polystyrène utilisées est égal à 400 nm. On remarque clairement que l'arrangement 3D des trous dans la matrice de silice dopée est de bien moins bonne qualité du point de vue de l'homogénéité des motifs.



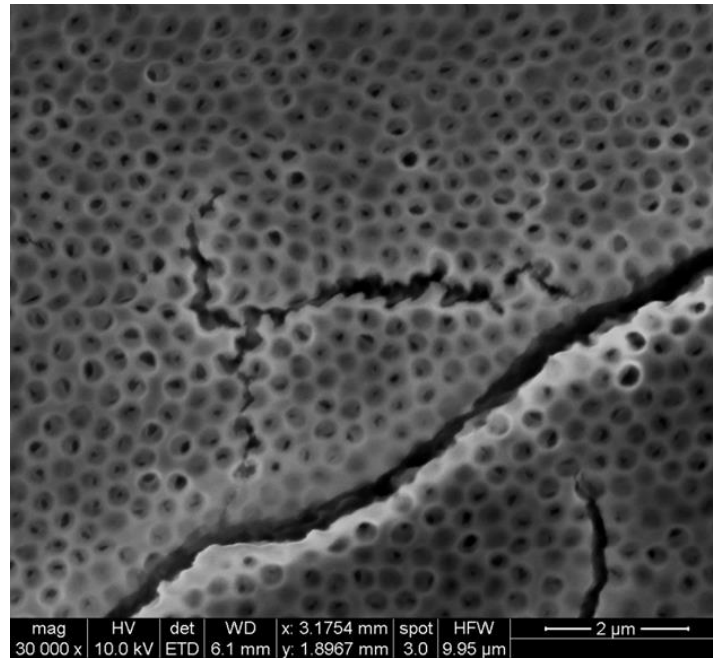


Figure III.15 : Image MEB d'une opale inverse dopée élaborée en s'inspirant des travaux de Hatton *et al.*

Après avoir détaillés dans cette partie les mécanismes et procédés d'élaboration des cristaux photoniques et magnéto-photonique 3D, l'étape suivante concerne la caractérisation optique et magnéto-optique de ces échantillons.

### III.3. Caractérisation optique et magnéto-optique

Deux bancs optiques sont utilisés afin d'étudier les propriétés optiques et magnéto-optiques des différents échantillons fabriqués. Ces dispositifs permettent de mesurer la transmittance, la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde ou du champ magnétique appliqué.

Cette partie explique d'abord la technique de mesure de la transmittance. Ensuite, elle détaille la description des bancs de mesure ainsi que les méthodes de calcul qui permettent de déterminer la rotation et l'ellipticité Faraday. Enfin, elle présente les différences entre les deux bancs de mesure utilisés.

#### III.3.1. Mesure de la transmittance

La spectroscopie par transmission permet de mettre en évidence les bandes interdites photoniques des cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D. La mesure de la transmittance est réalisée sur la gamme spectrale [400 nm - 1600 nm] en utilisant deux spectromètres CCD, le Maya2000 Pro et le NIRQuest512.

De façon générale un faisceau lumineux passe à travers un échantillon et l'énergie provenant de ce dernier est mesurée. La transmission  $T$  est définie comme la fraction d'énergie lumineuse traversant l'échantillon. Soit  $I'$  l'intensité de la lumière incidente à l'entrée de

l'échantillon et  $I''$  l'intensité de la lumière sortante de l'autre côté de ce même échantillon. On a donc :

$$T = \frac{I''}{I'} \quad \text{Equation III. 2}$$

On définit également le pourcentage de transmission  $T(\%)$  appelé transmittance par  $T(\%) = 100T$ .

Dans notre cas, le signal de référence est mesuré sur le substrat de verre. La transmission  $T$  est définie comme le ratio entre l'intensité de la lumière qui traverse l'échantillon ( $I_{\text{Ech}}$ ) et l'intensité de la lumière qui traverse le substrat de verre ( $I_{\text{Sub}}$ ). D'où :

$$T = \frac{I_{\text{Ech}}}{I_{\text{Sub}}} \quad \text{Equation III. 3}$$

Le nombre de mesures moyennées ainsi que le temps d'intégration des spectromètres sont ajustables afin d'avoir un meilleur rapport signal à bruit.

La mesure de la transmittance en fonction de la longueur d'onde, en modifiant l'angle d'incidence ( $\theta$ ) du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon, peut être déterminée. En effet, la position centrale de la BIP ( $\lambda_C$ ) pour les cristaux photoniques ayant une structure CFC suit la loi de Bragg modifiée [18] suivante :

$$\lambda_C = 2d_i \sqrt{n_{\text{eff}}^2 - \sin^2 \theta} \quad \text{Equation III. 4}$$

Avec  $\lambda_C$  la position centrale de la BIP,  $d_i$  la distance interplanaire,  $n_{\text{eff}}$  l'indice de réfraction moyen de la structure photonique,  $\theta$  l'angle d'incidence du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon.

Comme indiqué au chapitre I (paragraphe I.1.1.2.), cette équation prend en compte la réfraction de la lumière dans la structure composite ainsi que l'angle d'incidence de la lumière sur la surface de cette structure (figure III.16).

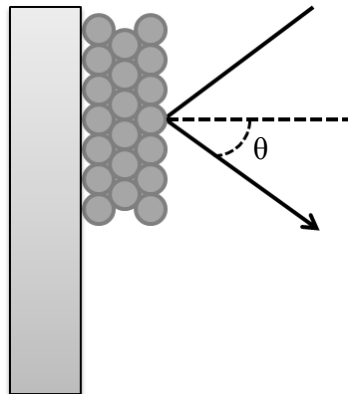


Figure III.16 : Représentation schématique du faisceau lumineux incident sur la surface de l'échantillon.

En traçant  $\lambda_C^2$  en fonction de  $\sin^2\theta$ , on obtient une droite linéaire d'équation :

$$\lambda_C^2 = -4d_i^2 \sin^2\theta + 4d_i^2 n_{\text{eff}}^2 \quad \text{Equation III. 5}$$

La pente de cette droite permet de déterminer  $d_i$ . Dans le cas des plans (111), cela permet de calculer le diamètre des microbilles ( $D_{\text{sph}}$ ) en appliquant la formule suivante :

$$D_{\text{sph}} = \frac{d_{111}}{\sqrt{2/3}} \quad \text{Equation III. 6}$$

L'ordonnée à l'origine permet de déterminer la valeur de l'indice de réfraction moyen de la structure ( $n_{\text{eff}}$ ), puis l'indice de réfraction de la matrice solide ( $n_m$ ) en appliquant la formule suivante :

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{f_m n_m^2 + (1 - f_m) n_{\text{air}}^2} \quad \text{Equation III. 7}$$

Avec  $f_m$  la fraction volumique occupée par la matrice solide, égale à 0,74 pour une opale directe et 0,26 pour une opale inverse, et  $n_{\text{air}}$  l'indice de réfraction de l'air.

### III.3.2. Description des bancs optiques de mesure

Au cours de ce travail, deux bancs optiques de mesure développés au laboratoire ont été utilisés. Le premier, appelé polariseur-échantillon-analyseur (PEA), est basé sur l'utilisation des spectrophotomètres Maya2000 Pro et NIRQuest512 présentés au paragraphe III.3.1. Il permet la mesure de la transmittance et de la rotation Faraday au même point sur la gamme spectrale [400 nm - 1600 nm] par une méthode polarimétrique simple, mais pour une seule valeur de champ magnétique appliqué. Le deuxième, appelé polariseur-échantillon-modulateur-analyseur (PEMA), permet la mesure de la transmittance, de la rotation et de l'ellipticité Faraday au même point sur la gamme spectrale [330 nm - 1300 nm] pour un champ magnétique ajustable entre 0 et 1 T. Il est basé sur une configuration de mesure associant une modulation de la lumière et une détection synchrone. Le faisceau lumineux provient d'une lampe blanche suivie d'un monochromateur car la mesure sur toutes les longueurs d'ondes ne peut pas se faire en même temps.

### III.3.2.1. Banc Polariseur-Echantillon-Analyseur (PEA)

Le banc optique PEA (figure III.17) est un banc de mesure rapide qui permet d'estimer la valeur de la rotation Faraday.

#### - Description

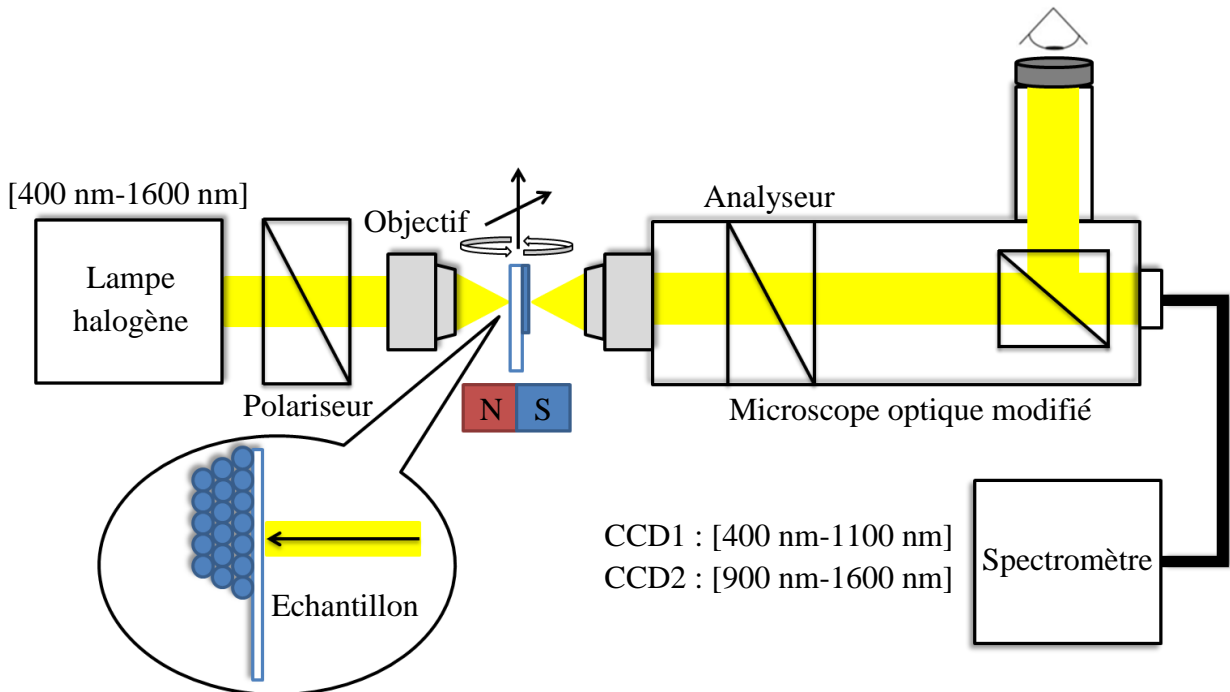


Figure III.17 : Banc de mesure PEA.

Le banc PEA permet de mesurer la rotation Faraday et la transmittance au même point. Il comporte principalement : une lampe halogène, un polariseur, un analyseur et un spectromètre CCD.

La lampe halogène (HL-2000) à une puissance de 7 Watts et est optimisée pour couvrir la gamme spectral [400 nm - 1600 nm]. Elle a une sortie fibrée.

Le polariseur sert à polariser rectilignement la lumière provenant de la lampe halogène. A la sortie, la direction de propagation de la lumière est suivant la direction de l'analyseur. Ce dernier est monté à l'intérieur d'un microscope optique qui comporte également un diviseur de faisceau permettant de visualiser la zone de l'échantillon où la lumière est focalisée. Le grandissement de l'objectif utilisé est de 6,3 et l'ouverture numérique est de 0,2. De ce fait, la taille du spot lumineux focalisé est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . Les deux polariseurs utilisés sont des prismes de Glan-Thompson de haute qualité ayant un taux d'extinction meilleur que  $10^{-5}$ .

L'échantillon est fixé sur un support mobile. La position de ce dernier est contrôlable verticalement et horizontalement, ce qui permet de balayer toute la surface de l'échantillon. Elle est également contrôlable en rotation, ce qui permet de modifier l'angle d'incidence de la lumière sur la surface de l'échantillon.

La lumière à analyser est transmise à un spectromètre CCD par l'intermédiaire d'une fibre optique. Le spectromètre CCD Maya2000 Pro est utilisé pour couvrir la zone visible-proche

infrarouge [400 nm - 1100 nm], tandis que le spectromètre NIRQuest512 est utilisé pour couvrir la zone proche infrarouge [900 nm - 1600 nm].

Pour réaliser les mesures magnéto-optiques, un aimant permanent Néodyme-Fer-Bore (NdFeB) est placé au voisinage de l'échantillon. En fonction de la distance entre le point de mesure et la position de l'aimant, un champ magnétique longitudinal allant jusqu'à 300 mT peut être appliqué. Cela permet de mesurer uniquement des zones de quelques millimètres en bords de l'échantillon.

### - Mesure de la rotation Faraday

L'évolution de la polarisation est représentée sur la figure III.18.

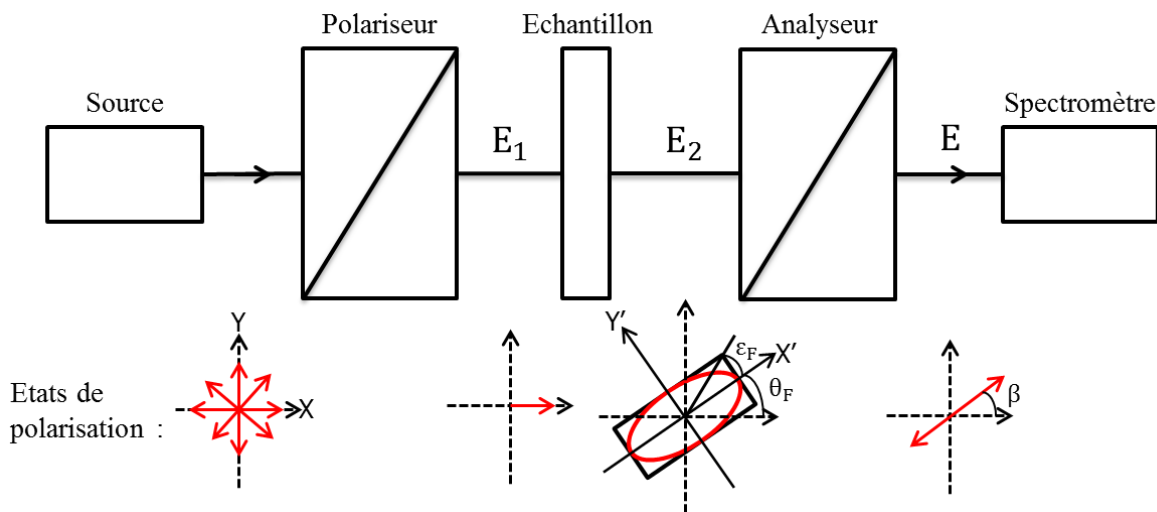


Figure III.18 : Evolution de la polarisation.

En traversant le polariseur, le faisceau lumineux, initialement non polarisé, se polarise rectilignement suivant la direction de ce dernier. Après l'échantillon, l'état de polarisation rectiligne se transforme en état elliptique caractérisé par deux angles : la rotation Faraday  $\theta_F$  et l'ellipticité Faraday  $\epsilon_F$ . La rotation Faraday est un effet non réciproque, si on inverse la direction du champ magnétique appliqué le signe de  $\theta_F$  change. Ici on néglige  $\epsilon_F$  et on détermine l'expression théorique de  $\theta_F$  par la méthode représentée sur la figure III.19.

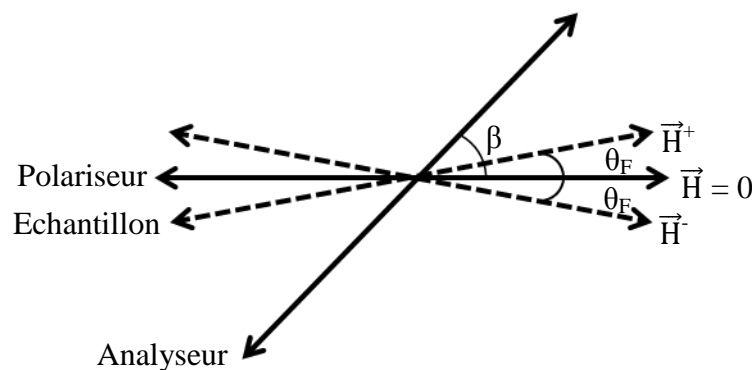


Figure III.19 : Méthode géométrique pour le calcul de la rotation Faraday.

Soit  $E^+$ ,  $E^-$  et  $E^0$  les projections des champs respectifs de l'onde après l'analyseur en appliquant soit un champ magnétique positif, soit le même champ magnétique négatif soit en l'absence de champ magnétique. L'amplitude de ces derniers s'écrit :

$$\begin{aligned} E^0 &= E_0 \cos(\beta) \\ E^+ &= E_0 \cos(\beta - \theta_F) \\ E^- &= E_0 \cos(\beta + \theta_F) \end{aligned} \quad \text{Equation III. 8}$$

Avec  $\beta$  l'azimut de l'analyseur.

Sachant que  $I = |E|^2$ , on obtient :

$$\begin{aligned} I^0 &= E_0^2 \left( \frac{1 + \cos 2\beta}{2} \right) \\ I^+ &= E_0^2 \left( \frac{1 + \cos 2(\beta - \theta_F)}{2} \right) \\ I^- &= E_0^2 \left( \frac{1 + \cos 2(\beta + \theta_F)}{2} \right) \end{aligned} \quad \text{Equation III. 9}$$

D'où :

$$I^+ - I^- = E_0^2 \sin 2\beta \sin 2\theta_F \quad \text{Equation III. 10}$$

$(I^+ - I^-)$  est maximale pour une valeur de l'azimut de l'analyseur  $\beta = 45^\circ$ .

Les valeurs de la rotation Faraday étant faibles, on peut considérer que  $\sin 2\theta_F \approx 2\theta_F$ . On obtient alors :

$$\begin{aligned} I^0 &= \frac{E_0^2}{2} \\ I^+ - I^- &= E_0^2 \sin 2\theta_F \approx 2E_0^2 \theta_F = 4I^0 \theta_F \end{aligned} \quad \text{Equation III. 11}$$

Finalement :

$$\theta_F(^{\circ}) = \frac{180}{\pi} \left( \frac{I^+ - I^-}{4I^0} \right) \quad \text{Equation III. 12}$$

La détermination expérimentale de la rotation Faraday en utilisant le banc PEA consiste à mesurer l'intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde respectivement en absence et sous deux directions opposées du champ magnétique appliqué par l'aimant permanent. Dans cette configuration, le champ magnétique n'est pas complètement saturé. Par contre, la valeur de ce dernier est identique pour  $I^+$  et  $I^-$ . Ainsi, on s'intéresse à l'allure spectrale de la rotation Faraday et non à son amplitude. Par cette méthode, la transmittance et la rotation Faraday sont mesurées au même point.

### III.3.2.2. Banc Polariseur-Echantillon-Modulateur-Analyseur (PEMA)

Le banc optique PEMA (figure III.20) est un banc de mesure polarimétrique précis.

#### - Description

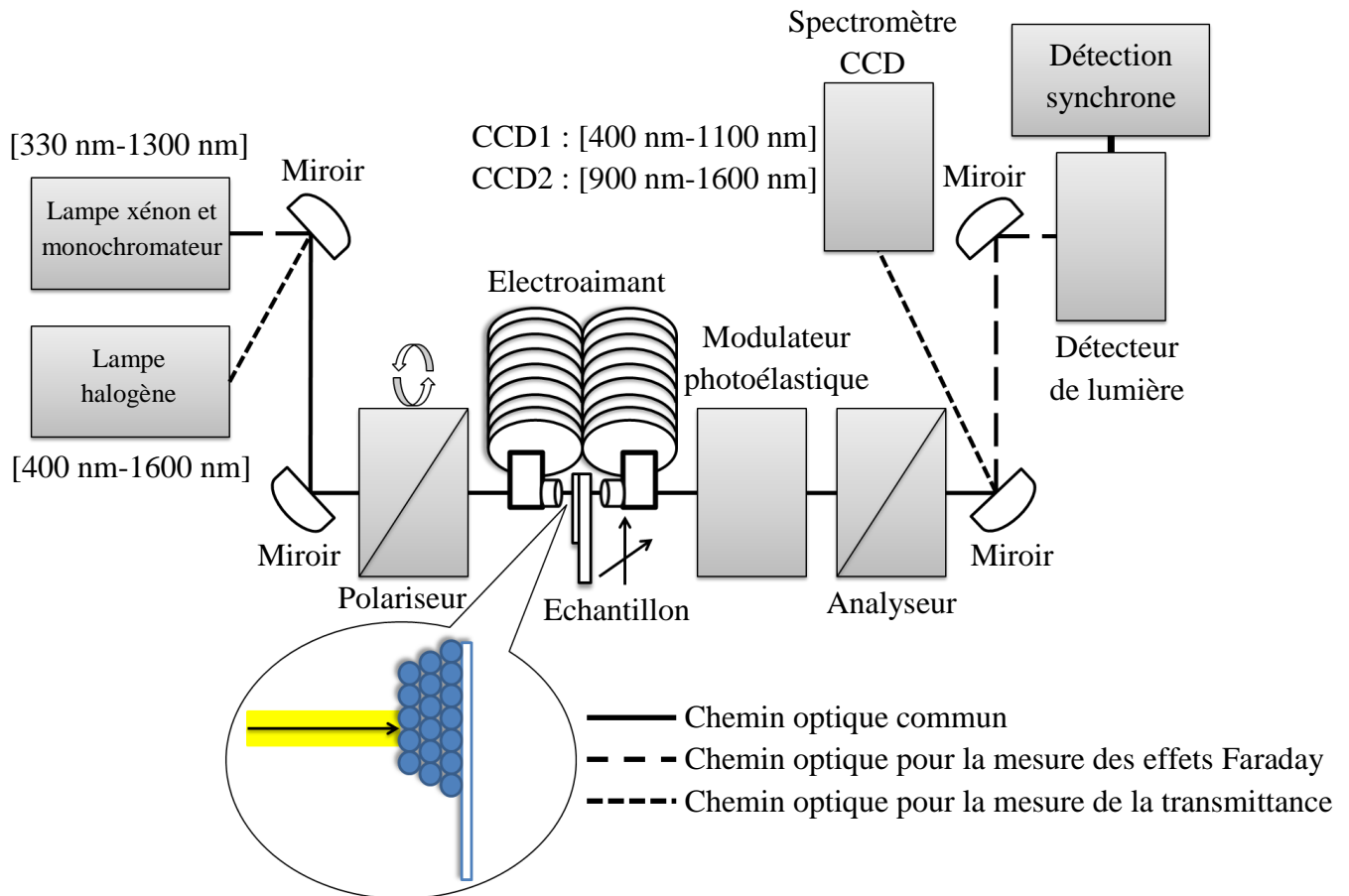


Figure III.20 : Banc polarimétrique de mesure PEMA.

Le banc PEMA permet de mesurer la rotation et l'ellipticité Faraday au même point. Il comporte principalement : un illuminateur spectral composé d'une source xénon 450 Watts et d'un monochromateur TRIAX180 motorisé, un polariseur, un électroaimant, un modulateur photoélastique, un analyseur, un détecteur et une détection synchrone.

Le monochromateur couvre la gamme spectrale [330 nm - 1300 nm]. Il sert à séparer les différentes longueurs d'onde d'un faisceau lumineux provenant de la source xénon. Un filtre de séparation est placé à la sortie de la fibre optique d'entrée. Ainsi, les ordres supérieurs de diffraction sur le réseau sont filtrés. La résolution spectrale de l'ensemble « source-monochromateur » est donnée sur la figure III.21 en termes de largeur à mi-hauteur du spectre émis pour une largeur des fentes d'entrée et de sortie du monochromateur (L) allant de 0,5 à 7 mm.

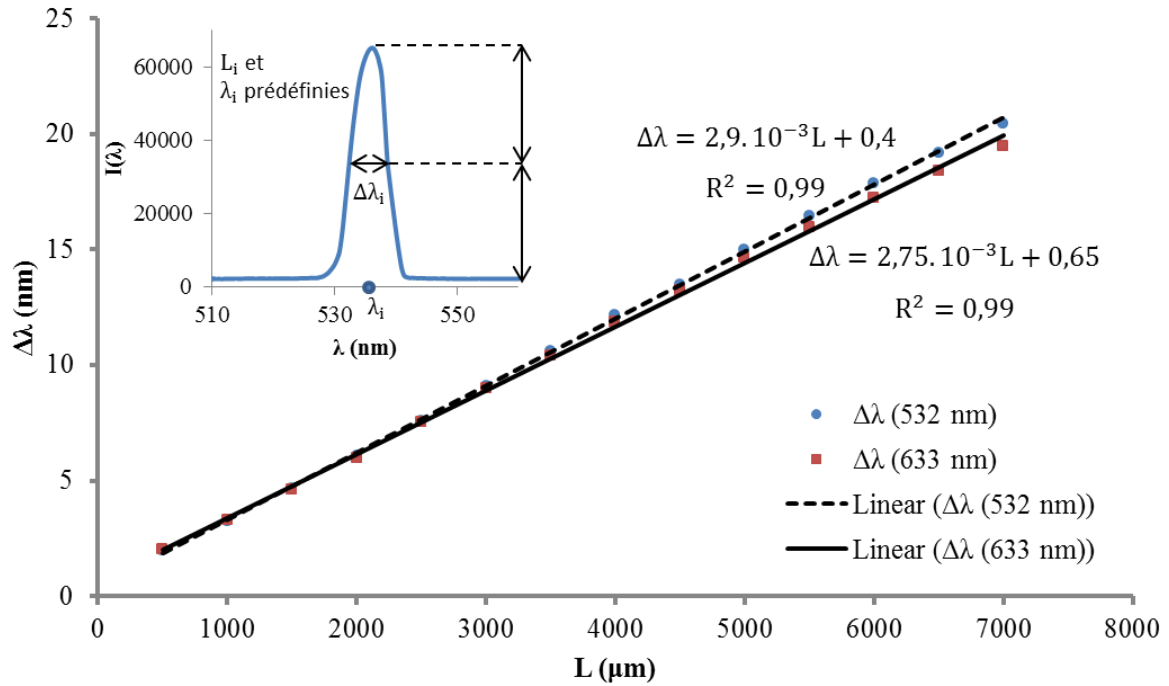


Figure III.21 : Résolution spectrale pour deux longueurs d'ondes différentes, respectivement 532 nm et 633 nm.

Cette largeur à mi-hauteur est donnée pour deux longueurs d'onde centrales : 532 nm et 633 nm. L'insert de la figure III.21 illustre la façon de déterminer  $\Delta(\lambda)_i$  (nm) pour une  $L_i$  ( $\mu\text{m}$ ) et une  $\lambda_i$  (nm) prédéfinies. La résolution spectrale est égale à 2,9 nm/mm autour de 532 nm et 2,75 nm/mm autour de 633 nm. En variant la longueur d'onde une légère variation de la résolution spectrale, de l'ordre de 0,15 nm/mm, est observée.

Le faisceau lumineux sortant de la fibre optique d'entrée, ayant un diamètre de 1 mm, est divergent. Des miroirs sphériques sont utilisés afin de focaliser et orienter la propagation de la lumière le long du trajet optique. La taille du spot lumineux traversant l'échantillon est de 1 mm.

La lumière non polarisée passe d'abord à travers un polariseur qui sert à la polariser linéairement. Ce dernier est contrôlable en rotation grâce à un moteur contrôlé par ordinateur. Cela permet de mesurer des rotations optiques avec une sensibilité de  $0,001^\circ$ .

L'électroaimant est utilisé pour générer un champ magnétique contrôlable dans la gamme  $[-0,8 \text{ T} ; 0,8 \text{ T}]$ , parallèle à la direction de propagation de la lumière, dans la région où se trouve l'échantillon à mesurer. Ce dernier est fixé sur un support contrôlable verticalement et horizontalement ce qui permet de balayer toute sa surface.

En traversant l'échantillon, l'état de polarisation de la lumière initialement linéaire est modifié. La lumière passe ensuite à travers un modulateur photoélastique qui va moduler périodiquement l'état de polarisation. Le modulateur photoélastique est constitué d'un barreau rectangulaire de silice soumis à une contrainte produite par un transducteur piézoélectrique oscillant à une fréquence  $F = 50 \text{ kHz}$ . La contrainte crée dans le barreau une anisotropie optique résonnante, dont l'amplitude dépend de la tension appliquée. La lumière polarisée qui



passer à travers ce modulateur est affectée par un déphasage de la forme :  $\Delta(t) = \delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft)$  entre les axes propres du modulateur photoélastique. En traversant l'analyseur la lumière se projette suivant la direction de l'axe de ce dernier.

Le détecteur couvre la gamme spectrale [330 nm - 1300 nm] et a une bande passante (-3 dB) égale à 200 kHz. La détection synchrone, référencée à la fréquence  $F$  du modulateur photoélastique, permet l'acquisition des composantes continue et alternative du signal aux fréquences  $F$  et  $2F$ . Les informations sont traitées par l'ordinateur. Un programme permet par son interface graphique de contrôler les différents éléments constituant le banc PEMA et d'afficher les résultats de mesure.

Pour mesurer la transmittance en fonction de la longueur d'onde, l'illuminateur spectral est remplacé par une lampe halogène. Ainsi, un miroir rajouté au banc PEMA permet d'orienter le faisceau lumineux vers un spectromètre CCD.

Le formalisme de Jones permet de calculer l'intensité à l'issue de l'analyseur. Ce formalisme consiste à représenter chaque élément optique par une matrice de passage qui contient la modification apportée par l'élément à un état de polarisation. Lorsque l'on a plusieurs éléments, il suffit de multiplier les matrices de chacun pour obtenir l'état de polarisation final.

#### - Calibration et mise en œuvre

L'évolution de la polarisation est représentée par la figure III.22.

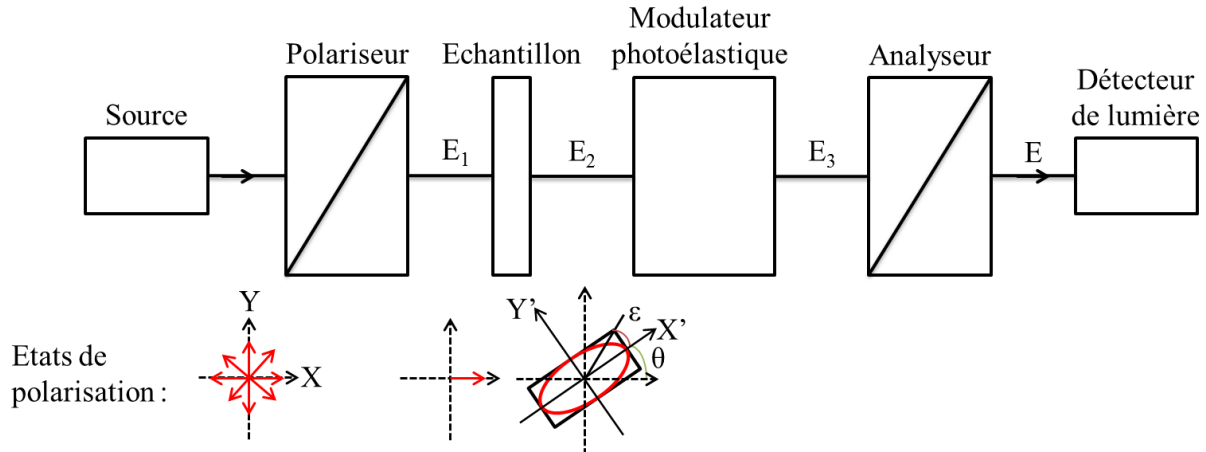


Figure III.22 : Evolution de la polarisation.

En traversant le polariseur, le faisceau lumineux, initialement non polarisé, se polarise rectilignement suivant la direction de ce dernier. Après l'échantillon, l'état de polarisation rectiligne se transforme en un état elliptique caractérisé par deux angles :  $\theta$  et  $\epsilon$ , dont le vecteur de Jones exprimé dans le repère de l'ellipse (X'Y') s'écrit :  $\begin{bmatrix} \cos \epsilon \\ i \sin \epsilon \end{bmatrix}$ .  $\theta$  et  $\epsilon$  peuvent être déterminées en utilisant un modulateur photoélastique, un analyseur et un détecteur de lumière. Le modulateur photoélastique est orienté suivant l'axe du polariseur, sa matrice de

Jones s'écrit :  $M = \begin{bmatrix} e^{i\Delta(t)} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}$ . L'azimut  $\beta$  de l'analyseur est fixé à  $-45^\circ$  par rapport à l'axe du polariseur, sa matrice de Jones s'écrit :  $A = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix}$ .

Le vecteur de Jones représentant l'état de polarisation à la sortie du modulateur s'écrit :

$$E_3^{XY} = M \cdot R(-\theta) \cdot E_2^{X'Y'} \quad \text{Equation III. 13}$$

Avec  $E_2^{X'Y'}$  le vecteur de Jones représentant l'état de polarisation incident sur le modulateur photoélastique, exprimé dans le repère de l'ellipse.

Le champ électrique, exprimé dans le repère de l'analyseur, représentant l'onde lumineuse reçue par le détecteur est donné par :

$$E = A \cdot R(\beta) \cdot M \cdot R(-\theta) \cdot E_2^{X'Y'} \quad \text{Equation III. 14}$$

Soit en développant :

$$E = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \beta & -\sin \beta \\ \sin \beta & \cos \beta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\Delta(t)} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \cos \varepsilon \\ \sin \varepsilon \end{bmatrix} \quad \text{Equation III. 15}$$

D'où :

$$I(t) = \left[ \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \sin 2\varepsilon \sin \Delta(t) - \frac{1}{2} \sin 2\theta \cos 2\varepsilon \cos \Delta(t) \right] I_{\text{lampe}}(\lambda) \quad \text{Equation III. 16}$$

Avec  $I_{\text{lampe}}(\lambda)$  intensité initiale de la lampe et  $\Delta(t) = \delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft)$  où  $\delta_0$  est la biréfringence résiduelle du barreau et  $\Delta_m$  est l'amplitude du déphasage introduit par le PEM.

On peut alors écrire  $I(t)$  sous la forme :

$$I(t) = [1 + I_s \sin(\delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft)) + I_c \cos(\delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft))] \frac{I_{\text{lampe}}(\lambda)}{2} \quad \text{Equation III. 17}$$

Avec  $I_s = \sin 2\varepsilon$  et  $I_c = -\sin 2\theta \cos 2\varepsilon$ .  $I_s$  et  $I_c$  sont des intensités normalisées qui contiennent les caractéristiques de l'échantillon.

Pour développer cette expression, on utilise les formules de Bessel du premier ordre :

$$\begin{aligned} \cos(\delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft)) &= \cos \delta_0 [J_0(\Delta_m) - 2J_2(\Delta_m) \sin(4\pi Ft)] - \sin \delta_0 2J_1(\Delta_m) \sin(2\pi Ft) + \dots \\ \sin(\delta_0 + \Delta_m \sin(2\pi Ft)) &= \sin \delta_0 [J_0(\Delta_m) - 2J_2(\Delta_m) \sin(4\pi Ft)] + \cos \delta_0 2J_1(\Delta_m) \sin(2\pi Ft) + \dots \end{aligned}$$

$J_i(x)$  est la fonction de Bessel de première espèce.

En utilisant les gains  $K_{DC}$ ,  $K_F$  et  $K_{2F}$  du détecteur et de la détection synchrone aux fréquences continue,  $F$  et  $2F$  on obtient les tensions mesurées :

$$\begin{aligned} V_{DC} &= K_{DC}(\lambda) \left\{ [1 + J_0(\Delta_m)(I_s \sin \delta_0 + I_c \cos \delta_0)] \frac{I_{lampe}(\lambda)}{2} \right\} \\ V_F &= K_F(\lambda) \left[ 2J_1(\Delta_m)(I_s \cos \delta_0 - I_c \sin \delta_0) \frac{I_{lampe}(\lambda)}{2} \right] \\ V_{2F} &= K_{2F}(\lambda) \left[ -2J_2(\Delta_m)(I_s \sin \delta_0 + I_c \cos \delta_0) \frac{I_{lampe}(\lambda)}{2} \right] \end{aligned} \quad \text{Equation III. 18}$$

Afin de s'affranchir de la variation d'intensité de la lampe source en fonction de la longueur d'onde, on travaille avec les grandeurs :

$$\begin{aligned} \frac{V_F}{V_{DC}} &= \frac{2T_1 J_1(\Delta_m)(I_s \cos \delta_0 - I_c \sin \delta_0)}{1 + J_0(\Delta_m)(I_s \sin \delta_0 + I_c \cos \delta_0)} \\ \frac{V_{2F}}{V_{DC}} &= \frac{2T_2 J_2(\Delta_m)(I_s \sin \delta_0 + I_c \cos \delta_0)}{1 + J_0(\Delta_m)(I_s \sin \delta_0 + I_c \cos \delta_0)} \end{aligned} \quad \text{Equation III. 19}$$

Avec  $T_1 = K_F(\lambda)/K_{DC}(\lambda)$  et  $T_2 = -K_{2F}(\lambda)/K_{DC}(\lambda)$  respectivement les coefficients de transmission électroniques à la fréquence des deux premières harmoniques.

A partir de ces deux grandeurs, pour remonter aux paramètres des échantillons  $(\theta, \epsilon)$  contenus dans les grandeurs  $I_c$  et  $I_s$ , il faut déterminer les coefficients :  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\Delta_m$  et  $\delta_0$  en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  sur une gamme spectrale donnée [137]. Le détail de la procédure de calibration est donné en annexe.

La figure III.23 montre un exemple de fichier de calibration qui contient les valeurs de  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\Delta_m$  et  $\delta_0$  sur la gamme spectrale [400 nm – 800 nm]. Comme  $V_F/V_{DC}$  et  $V_{2F}/V_{DC}$  sont respectivement proportionnel à  $J_1(\Delta_m)$  et  $J_2(\Delta_m)$ , pour que la valeur des intensités  $I_s$  et  $I_c$  soit maximale il ne faut pas que la valeur de  $J_1(\Delta_m)$  et de  $J_2(\Delta_m)$  soit nulle. Or  $\Delta_m$  variant avec la longueur d'onde, il est nécessaire d'ajuster sa valeur entre  $90^\circ$  et  $180^\circ$ , d'où les sauts observés sur la figure représentant  $\Delta_m(\lambda)$ .

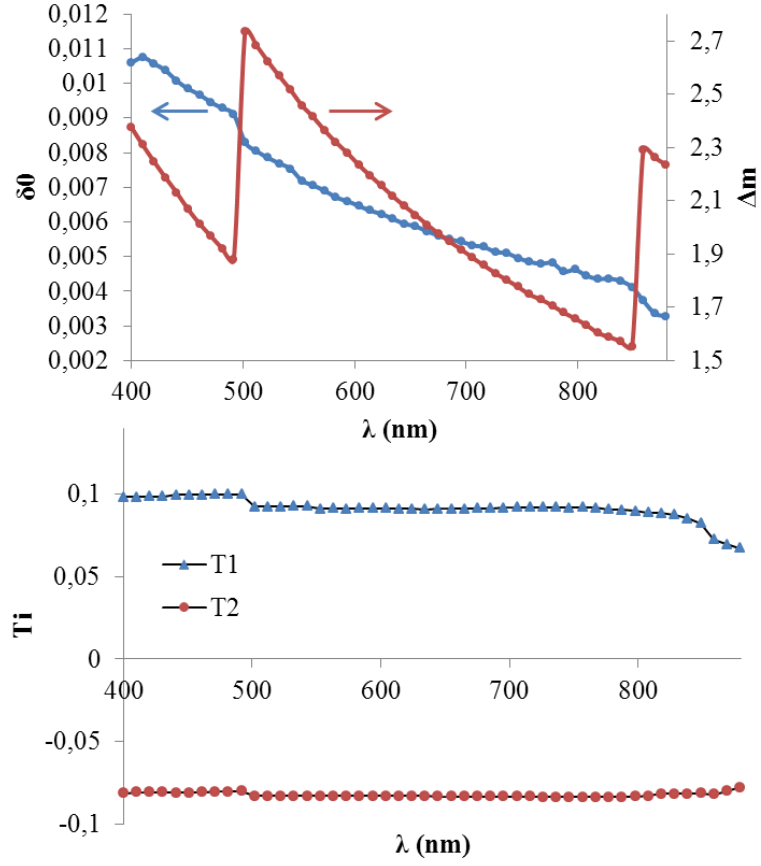


Figure III.23 :  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\Delta m$  et  $\delta_0$  sur la gamme spectrale 400nm-880nm.

Afin de déterminer les valeurs de  $\theta$  et  $\varepsilon$  de l'échantillon, on mesure  $V_F/V_{DC}$  et  $V_{2F}/V_{DC}$  en fonction de  $\lambda$ . On calcul ensuite  $I_s$  et  $I_c$  d'après les équations suivantes :

$$I_s = \frac{\left(\frac{V_F/V_{DC}}{2T_1J_1(\Delta_m)}\right) \cos\delta_0 + \left(\frac{V_{2F}/V_{DC}}{2T_2J_2(\Delta_m)}\right) \sin\delta_0}{1 - J_0(\Delta_m) \left(\frac{V_{2F}/V_{DC}}{2T_2J_2(\Delta_m)}\right)} \quad \text{Equation III. 20}$$

$$I_c = \frac{\left(\frac{V_{2F}/V_{DC}}{2T_2J_2(\Delta_m)}\right) \cos\delta_0 - \left(\frac{V_F/V_{DC}}{2T_1J_1(\Delta_m)}\right) \sin\delta_0}{1 - J_0(\Delta_m) \left(\frac{V_{2F}/V_{DC}}{2T_2J_2(\Delta_m)}\right)}$$

Finalement, la valeur de  $\varepsilon$  est donnée par :

$$\varepsilon(^{\circ}) = \frac{90}{\pi} \arcsin(I_s) \quad \text{Equation III. 21}$$

Et la valeur de  $\theta$  est donnée par :

$$\theta(^{\circ}) = \frac{90}{\pi} \arcsin\left(\frac{-I_c}{\cos 2\varepsilon_F}\right) \quad \text{Equation III. 22}$$

Une fois calibré, le banc permet d'obtenir les valeurs de rotation et ellipticité de tout état de polarisation. Ainsi, nous l'utilisons pour mesurer la rotation et ellipticité Faraday de nos échantillons.

### III.3.2.3. Comparaison des deux bancs PEA et PEMA

Le tableau III.3 résume les principales différences entre les deux bancs PEA et PEMA, utilisés pour réaliser la caractérisation optique et magnéto-optique.

Banc PEA	Banc PEMA
Permet de mesurer la valeur de la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde	Permet de mesurer la valeur de la rotation et de l'ellipticité Faraday au même point en fonction de la longueur d'onde et en fonction du champ magnétique appliqué
Permet de mesurer uniquement des zones en bords de l'échantillon	Permet de mesurer des zones sur toute la surface de l'échantillon
Permet de mesurer la transmittance en fonction de la longueur d'onde en modifiant l'angle d'incidence du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon	Ne permet pas cette mesure à cause de la position de l'échantillon dans l'entrefer de l'électroaimant
Basse sensibilité de mesure	Sensibilité de mesure de l'ordre de $0,001^\circ$ qui permet de détecter des faibles modifications des effets Faraday
Résolution de mesure moins importante	Résolution de mesure importante vu l'utilisation d'une détection synchrone qui permet de détecter des modifications d'intensités relativement faibles
Le spot lumineux sur la surface de l'échantillon est de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$ . De ce fait, la zone mesurée est plus homogène et contient moins de défauts	Le spot lumineux sur la surface de l'échantillon est de l'ordre de $1\ \text{mm}$ . De ce fait, la zone mesurée est moins homogène et contient plus de défauts

Tableau III.3 : Principales différences entre les deux bancs PEA et PEMA.

## III.4. Conclusion

Ce chapitre a présenté les méthodes les plus utilisées pour la fabrication des cristaux photoniques 3D. Au cours de ce travail, la technique choisie pour la fabrication des opales artificielles est le dépôt vertical.

L'opale directe est élaborée en utilisant une solution colloïdale commerciale contenant des microbilles de polystyrène monodisperses en suspension dans l'eau. Les pores des opales directes sont infiltrés par une solution sol-gel dopée ou non par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt provenant d'un ferrofluide. Après traitement thermique, l'acétate d'éthyle est utilisé pour dissoudre le polystyrène de l'opale infiltrée. La structure finale 3D, appelée opale inverse, est formée de trous d'air dans une matrice de silice dopée ou non. Dans le but d'améliorer la qualité des opales inverses en termes d'homogénéité et de profondeur de la BIP, une deuxième approche est mise en œuvre. Cette dernière consiste à rajouter une quantité de la solution sol-gel dans la solution de microbilles de polystyrène qui

sert à l'élaboration de l'opale directe. Les améliorations recherchées sont obtenues en utilisant des microbilles de polystyrène de petites tailles. Par contre, la qualité des opales inverses dopées est non satisfaisante.

Deux bancs optiques de mesure développés au laboratoire sont utilisés pour réaliser la caractérisation optique et magnéto-optique des opales. Le banc PEA permet de mesurer au même point, la transmittance et la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde en modifiant l'angle d'incidence du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon. Le banc PEMA permet à lui de mesurer au même point, la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde et du champ magnétique appliqué. On note que la sensibilité de mesure est plus importante sur le banc PEMA vu la présence d'une détection synchrone tandis que la taille du spot lumineux qui traverse l'échantillon est supérieure à celle dans le cas du banc PEA vu l'absence des objectifs de focalisation. Ces différences jouent un rôle important sur la précision ainsi que sur l'optimisation de la mesure.



---

## **IV. Cristaux magnéto-photoniques 3D : résultats expérimentaux**

---

Ce chapitre résume et interprète les résultats des mesures expérimentales réalisées sur les cristaux photoniques et magnéto-photoniques 3D. Il est divisé en trois parties principales et une conclusion qui résume son contenu.

La première partie est consacrée à l'analyse de la constitution et des propriétés optiques des opales inverses et inverses dopées. Ainsi, des images MEB de ces structures sont données. De plus, les bancs de mesure, présentés au long du chapitre précédent, ont permis d'étudier la position de la BIP en fonction de la taille des microbilles de polystyrène, du dopage par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt et de l'angle d'incidence de la lumière sur l'opale.

La deuxième partie est consacrée aux propriétés magnéto-optique des opales inverses dopées. Le caractère magnéto-optique des opales est tout d'abord démontré. Puis, le comportement de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde et du magnétique appliqué est étudié et comparé à celui des couches magnéto-optiques de référence. Finalement, le facteur de mérite en fonction de la longueur d'onde est présenté.

Au regard de ces résultats, un bilan du travail est réalisé et analysé par rapport aux objectifs initiaux. Des perspectives pour faire suite à ces travaux de thèse sont ensuite envisagées.

### **IV.1. Constitution et propriétés optiques des opales**

L'analyse de la constitution des opales inverses dopées ou non est basée sur une analyse des images MEB. Cette analyse permet d'observer la qualité de l'arrangement périodique 3D et la répartition des défauts structuraux. Elle permet également d'estimer l'épaisseur des opales.

Les propriétés optiques des opales sont étudiées en utilisant les bancs détaillés dans le chapitre précédent. En effet, ces dispositifs permettent de mesurer la transmittance en fonction de la longueur d'onde. En conséquence, la position de la BIP des opales inverses dopées ou non est déterminée en faisant varier la valeur du diamètre des microbilles de polystyrène, l'angle d'incidence de la lumière sur l'opale. Comme indiqué au chapitre III (paragraphe III.3.1), cette dernière manipulation permet de calculer le diamètre des trous d'air de l'opale inverse et l'indice de réfraction de la matrice de silice dopée ou non.

La présentation de ces différentes propriétés est tout d'abord faite pour les opales inverses non dopées, puis pour les dopées. Finalement, une comparaison structurelle est faite entre les deux.



### IV.1.1. Opales inverses

Pour mémoire, un procédé sol-gel basse température est utilisé pour infiltrer l'opale directe par une préparation sol-gel non-dopée. En conséquence, on obtient au final un réseau 3D formé par des trous d'airs dans une matrice de silice.

#### IV.1.1.1. Constitution physique

La microscopie électronique à balayage fournit des images de surface de nos opales inverses, ce qui nous permet d'évaluer la qualité structurale de nos échantillons. La figure IV.1 présente différentes images MEB d'opales inverses dont les valeurs du diamètre des microbilles de polystyrène utilisées pour élaborer les opales directes est de 400nm (figure IV.1.a), 450nm (figure IV.1.b), 800nm (figure IV.1.c) et 900nm (figure IV.1.d).

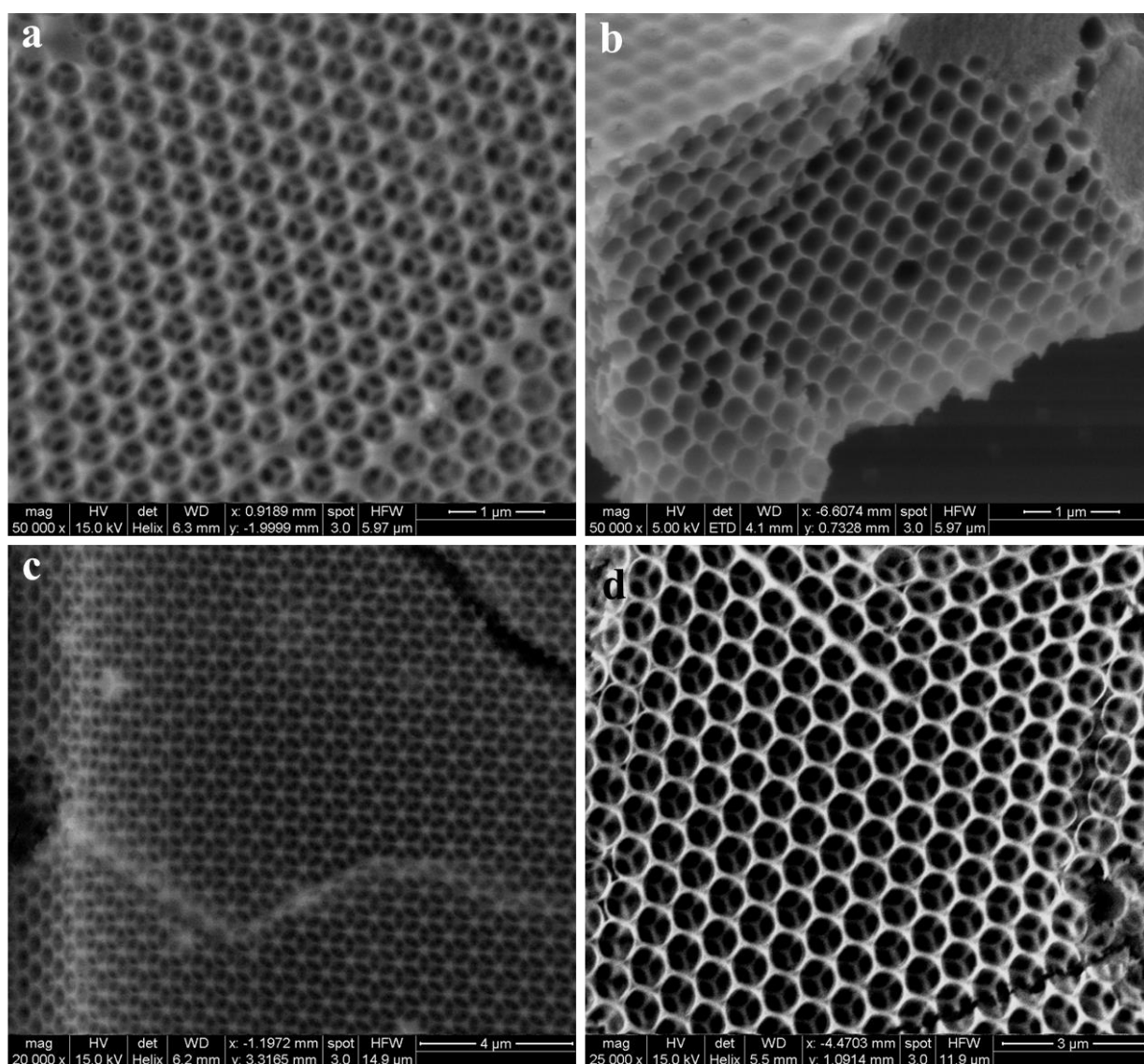


Figure IV.1 : Images MEB des opales inverses dont les valeurs du diamètre des microbilles des opales directes sont de a) 400nm, b) 450nm, c) 800nm et d) 900nm.

On peut tout d'abord clairement remarquer que quelle que soit la valeur du diamètre des microbilles de polystyrène utilisées pour élaborer l'opale directe, l'opale inverse présente une structure CFC. Ensuite, ces arrangements 3D, formés de trous d'air dans une matrice de silice, sont homogènes sur des surfaces de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{m}^2$ , et sont constitués par un empilement de plusieurs couches. Par exemple, pour la figure IV.1.b, l'opale est constituée d'une quinzaine de couches pour un diamètre des microbilles de polystyrène de 450nm. De ce fait, l'épaisseur de l'opale est estimée à une valeur de l'ordre de  $7\mu\text{m}$ .

Ces résultats montrent que la qualité structurale de nos opales inverses est du même type que celles publiées dans la littérature qui utilisent la technique du dépôt vertical ainsi qu'un procédé sol-gel basse température [13-18].

#### IV.1.1.2. Bande interdite photonique

La transmittance en fonction de la longueur d'onde à incidence normale a été mesurée en utilisant les bancs optiques. Cette mesure met en évidence la position de la BIP en faisant varier la valeur du diamètre des microbilles de polystyrène ( $D_{\text{sph}}$ ), utilisées pour élaborer l'opale directe.

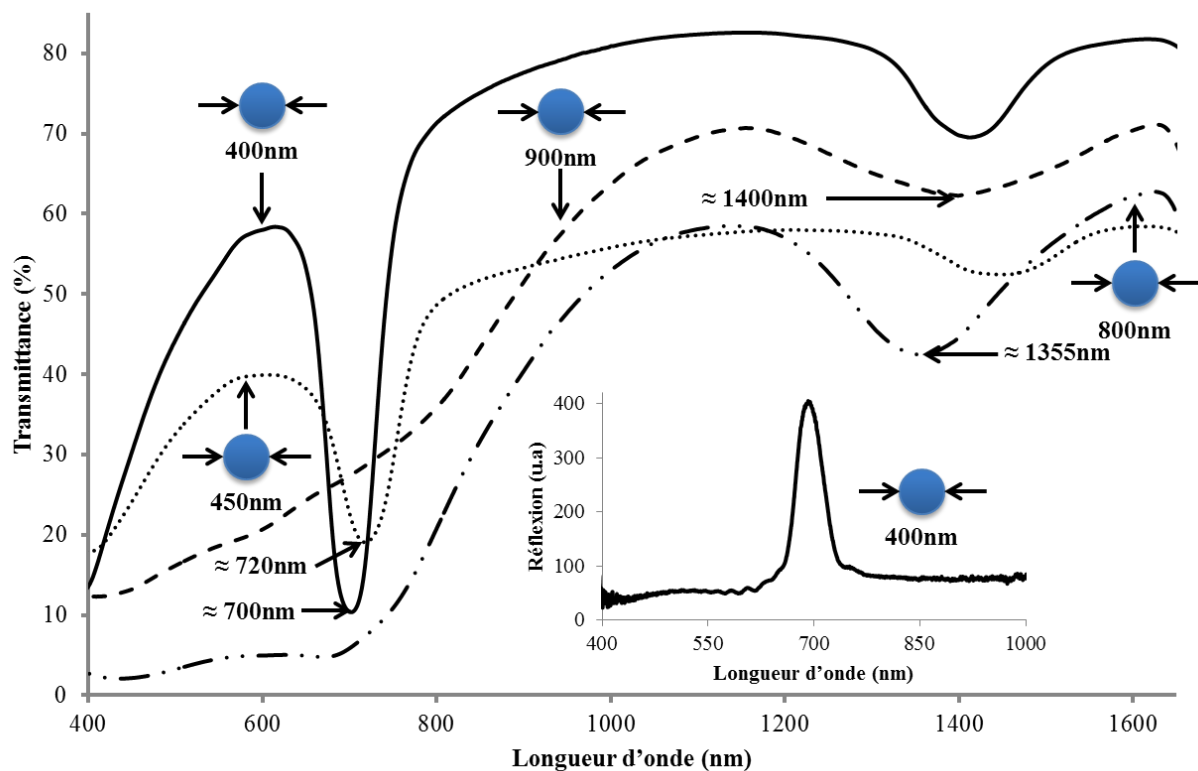


Figure IV.2 : Transmittance en fonction de la longueur d'onde de quatre opales inverses en variant la valeur du diamètre des microbilles. L'insert montre la réflexion pour une valeur des microbilles de 400 nm.

La figure IV.2 montre la transmittance en fonction de la longueur d'onde de quatre opales inverses. Cette figure met en évidence la modification de la position de la longueur d'onde centrale  $\lambda_c$  selon la taille des microbilles. En effet, la valeur de  $\lambda_c$  augmente avec la valeur du

diamètre des microbilles de l'opale directe. Pour l'exemple de la figure, la profondeur de la BIP est de l'ordre de 50%, 20%, 15%, 10% de la transmittance respectivement avec le diamètre croissant des microbilles. On remarque que lorsqu'on augmente la taille des microbilles, la profondeur de la BIP diminue tandis que la largeur à mi-hauteur relative est identique. L'insert de la figure montre la réflexion pour une valeur des microbilles de 400 nm. On remarque qu'à l'intérieur de la BIP l'onde est réfléchie.

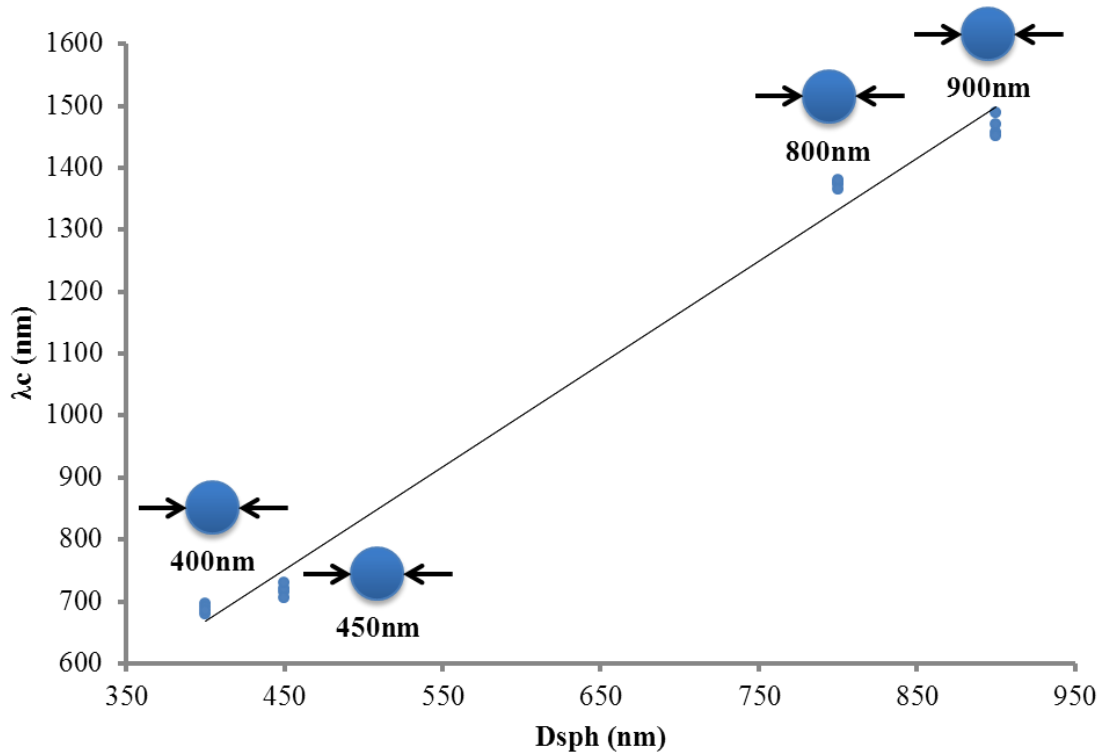


Figure IV.3 : Position de la BIP en fonction de la valeur du diamètre des microbilles de l'opale directe.

Sur la figure IV.3 la position de  $\lambda_c$  est tracée en fonction de la valeur du diamètre des microbilles de l'opales directe. Cette variation est linéaire et est due à la modification de  $D_{sph}$ , conformément à la loi de Bragg définie par :

$$\lambda_c = 2 \cdot D_{sph} \cdot \sqrt{\frac{2}{3} \cdot \sqrt{[f_m \cdot n_m^2 + (1 - f_m) \cdot n_{air}^2]} - \sin^2 \theta} \quad \text{Equation IV. 1}$$

On peut ainsi vérifier que la position de la BIP peut être contrôlée en modifiant la taille des microbilles de l'opale directe.

L'ensemble de ces résultats confirme la bonne qualité de nos opales inverses. Dans le paragraphe suivant, une étude du même type est réalisée pour les opales inverses dopées.

### IV.1.2. Opales inverses dopées

La technique de préparation des opales inverses dopées consiste cette fois à imprégner les opales directes par une préparation sol-gel dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dont le diamètre est de l'ordre de 10 nm. En conséquence, on obtient au final un réseau 3D formé par des trous d'airs dans une matrice de silice dopée.

#### IV.1.2.1. Constitution physique

La figure IV.4 présente différentes images MEB des opales inverses dopées. La valeur du diamètre des microbilles de polystyrène de l'opale directe est égale à 450 nm pour les figure IV.4.a, figure IV.4.b et figure IV.4.c et 400 nm pour la figure IV.4.d.

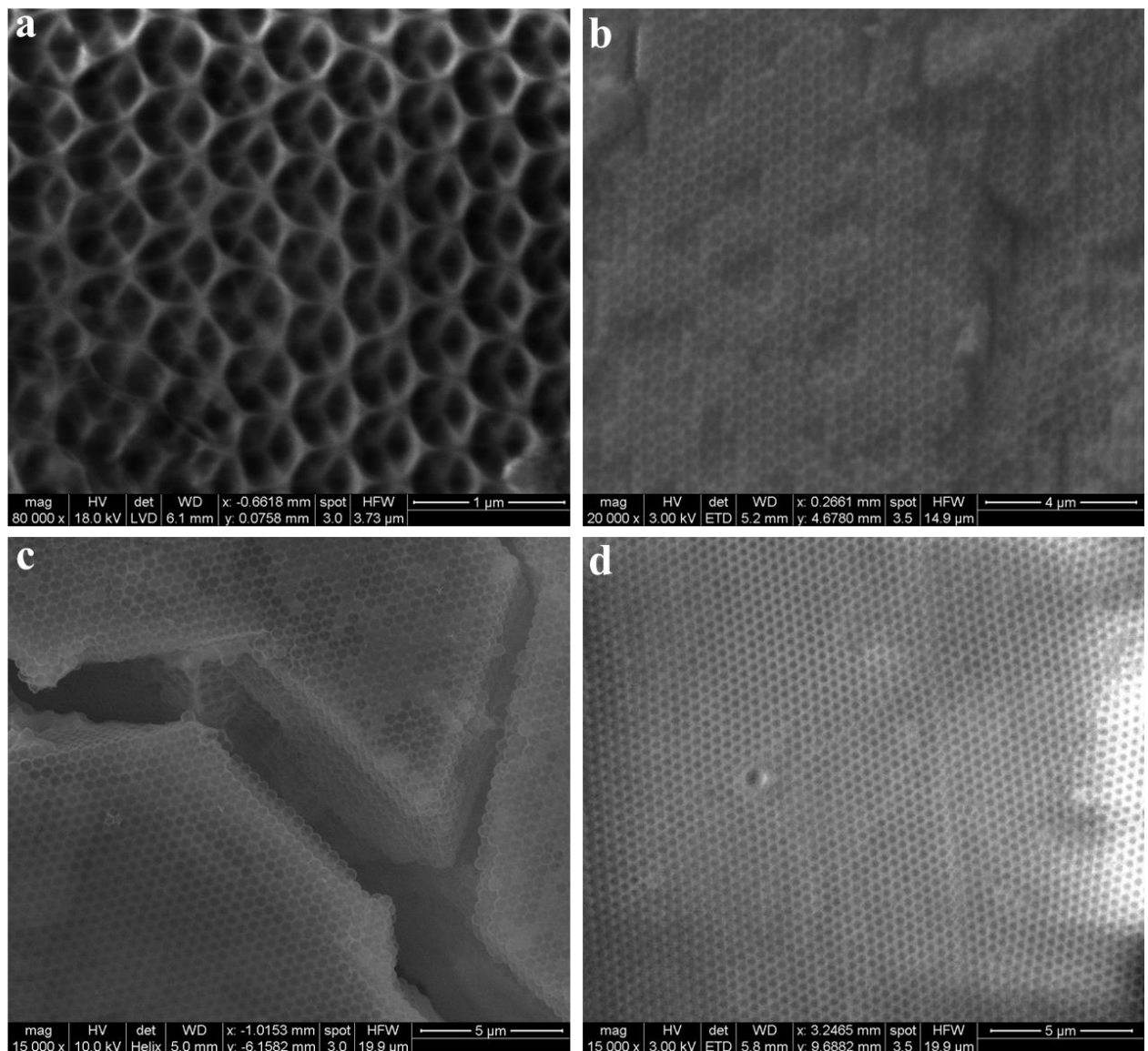


Figure IV.4 : Images MEB des opales inverses dopées dont les valeurs du diamètre des microbilles des opales directes sont de a, b, c) 450nm et d) 400nm.

Comme le montre la figure IV.4, le procédé d'imprégnation des opales directes par une matrice de silice dopée n'a pas endommagé l'arrangement 3D de la structure finale. En effet, l'opale inverse dopée présente toujours une structure CFC (figure IV.4.a) et les arrangements 3D, formés de trous d'air dans une matrice de silice dopée, sont homogènes sur des surfaces de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{m}^2$  (figure IV.4.c et figure IV.4.d) et sont constitués par un empilement de plusieurs couches (figure IV.4.c). La figure IV.4.b montre que certains défauts linéaires sont arrangés suivant des triangles équilatéraux ce qui peut indiquer une bonne cristallisation de la structure.

L'ensemble de nos résultats montrent que notre technique sol-gel basse température conduit à la réalisation de cristaux magnéto-photoniques 3D ayant une bonne qualité structurale.

#### IV.1.2.2. Bande interdite photonique

La modification de la position de la BIP d'une opale inverse dopée par rapport à une non-dopée est évaluée en fonction de la modification du diamètre des microbilles de l'opale directe, ainsi qu'en fonction de la modification de la concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans la matrice de silice.

##### - Influence du diamètre des microbilles de polystyrène

La figure IV.5 montre l'évolution de la position de  $\lambda_c$  des opales inverses dopées en fonction de la valeur du diamètre des microbilles des opales directes. La courbe en insert montre la transmittance d'une opale inverse dopée ou non où les opales directes respectives sont élaborées à partir des microbilles de 450 nm.

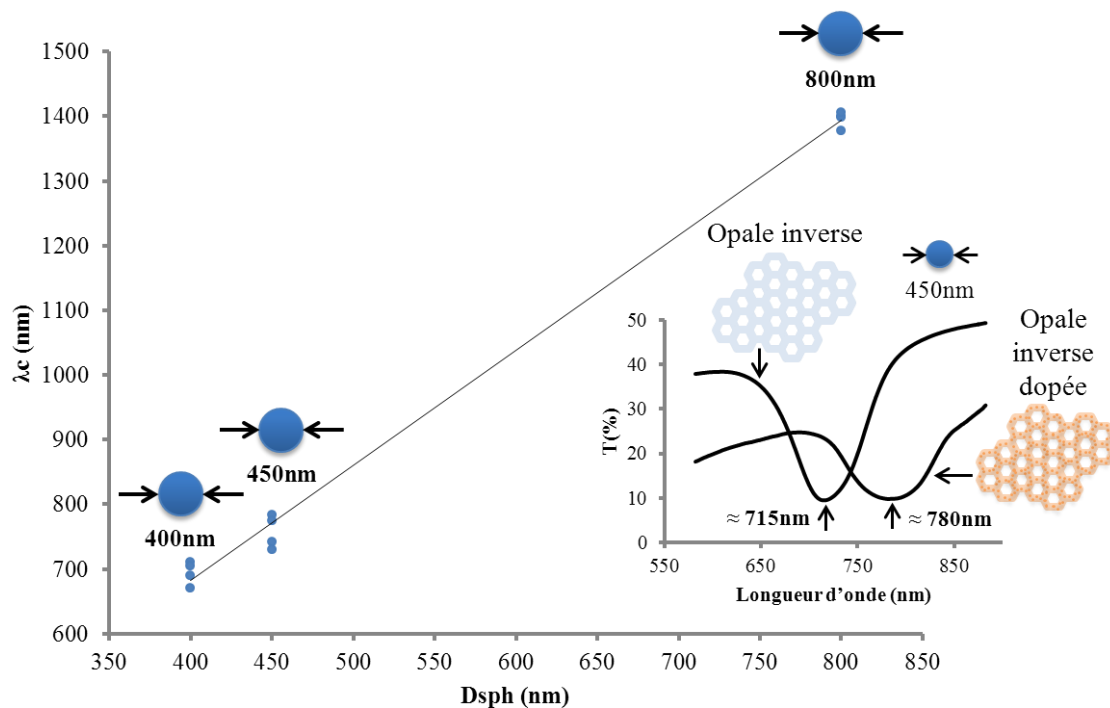


Figure IV.5 : Position de la BIP en fonction de la valeur du diamètre des microbilles des opales directes en dopant la matrice de silice. La courbe en insert montre la transmittance d'une opale inverse dopée ou non où les opales directes respectives sont élaborées à partir des microbilles de 450 nm.

On remarque que l'évolution de  $\lambda_C$  en fonction de  $D_{sph}$  a une allure linéaire. Sur la courbe en insert, on observe que la position de  $\lambda_C$  se décale d'une valeur de l'ordre de 65 nm lorsqu'on dope la matrice de silice. Cette modification est certainement due au fait que les indices de réfraction de la matrice dopée ou non sont différents. La figure IV.6 représente une mesure ellipsométrique de l'indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde d'une matrice de silice dopée ou non.

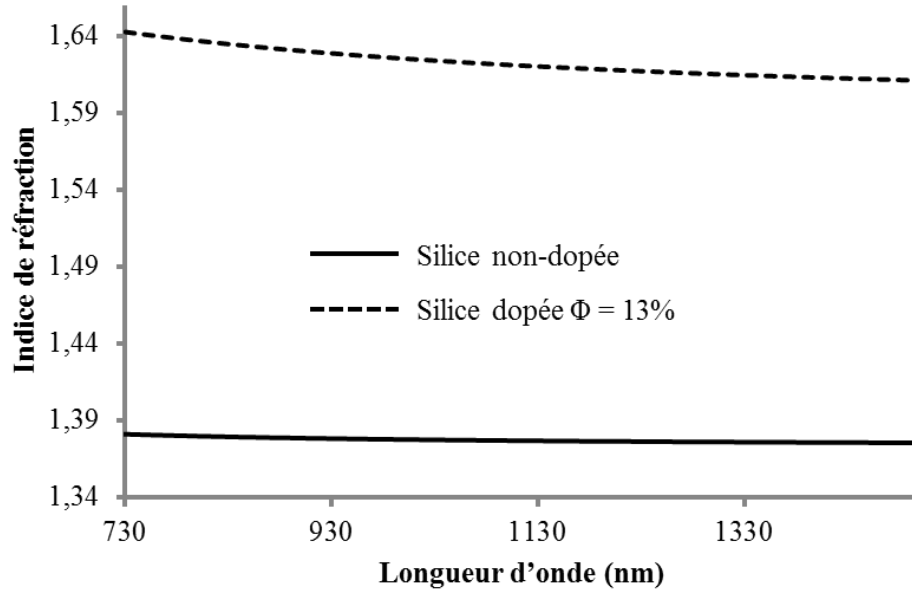


Figure IV.6 : Indice de réfraction en fonction de la longueur d'onde d'une matrice de silice dopée ou non.

On constate que la valeur de l'indice de réfraction à 750 nm varie entre 1,38 pour la matrice de silice non dopée et 1,64 pour la matrice dopée. En effet, la valeur de l'indice de réfraction du ferrite de cobalt ( $\geq 2.5$ ) [138] est supérieure à celle de la matrice de silice non dopée. De ce fait, la présence de la ferrite de cobalt dans la matrice de silice augmente la valeur de son indice de réfraction. Cela explique donc le décalage de la position de  $\lambda_C$  en se référant à la loi de Bragg (Equation IV.1).

#### - Influence de la concentration volumique en nanoparticules magnétiques

Afin d'étudier l'impact de la concentration volumique des nanoparticules magnétiques sur la position  $\lambda_C$  de la BIP, des opales inverses ont été élaborées avec des solutions sol-gel présentant des taux de dopage différents. La concentration volumique en nanoparticules dans la matrice de silice finale est obtenue par mesure de la rotation Faraday d'une couche de référence faite avec la même préparation sol-gel. La figure IV.7 représente l'évolution de  $\lambda_C^2$  des opales inverses dopées en fonction de la concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans la matrice de silice. Pour chaque  $\Phi$ , plusieurs mesures de  $\lambda_C^2$  correspondant à plusieurs échantillons sont reportées.

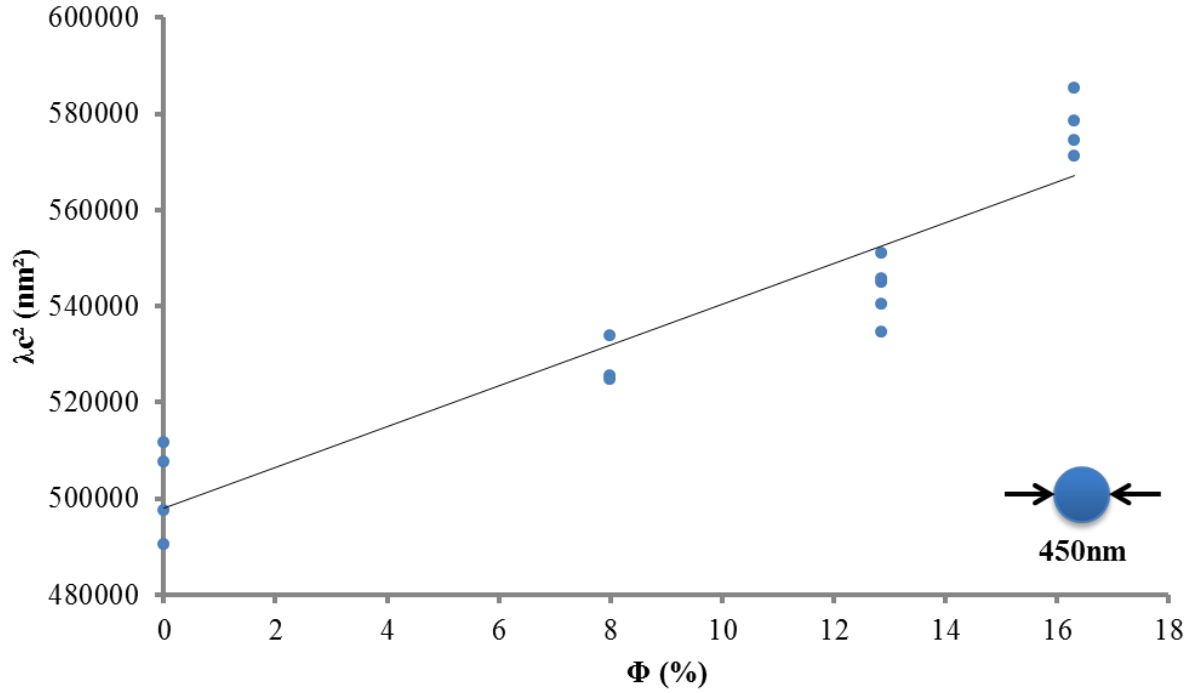


Figure IV.7 : Position de la BIP en fonction de la concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans la matrice de silice.

L'évolution de  $\lambda_C^2$  en fonction de  $\Phi$  a une allure linéaire. En effet, à incidence normale, la loi de Bragg s'écrit :

$$\lambda_C = 2 \cdot D_{\text{sph}} \cdot \sqrt{\frac{2}{3} \cdot \sqrt{f_m \epsilon_m + (1 - f_m) \epsilon_{\text{air}}}} \quad \text{Equation IV. 2}$$

Avec  $\lambda_C$  la position centrale de la BIP,  $D_{\text{sph}}$  le diamètre des microbilles,  $f_m$  la fraction volumique occupée par la matrice solide égale à 0,26% pour une opale inverse,  $\epsilon_m$  et  $\epsilon_{\text{air}}$  respectivement la permittivité de la matrice solide et celui de l'air.

La matrice de silice dopée étant un matériau composite constitué de silice et de nanoparticules,  $\epsilon_m$  se décompose sous la forme suivante :

$$\epsilon_m = \epsilon_p \Phi + (1 - \Phi) \epsilon_s \quad \text{Equation IV. 3}$$

Avec  $\epsilon_p$  la permittivité des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt,  $\Phi$  la concentration volumique en nanoparticules magnétiques dans la matrice solide, et  $\epsilon_s$  la permittivité de la silice pure.

D'où :

$$\lambda_C^2 = \frac{8}{3} D_{\text{sph}}^2 [\Phi (\epsilon_p - \epsilon_s) f_m + (\epsilon_s - \epsilon_{\text{air}}) f_m + \epsilon_{\text{air}}] \quad \text{Equation IV. 4}$$

En conséquence, il semble cohérent que  $\lambda_C^2$  varie linéairement en fonction de  $\Phi$ .

L'ensemble de ces résultats confirme la bonne qualité de nos opales inverses dopées. Avant de passer à la caractérisation magnéto-optique de nos cristaux magnéto-photoniques 3D, une dernière étude de comparaison structurale entre une opale inverse non dopée et une dopée est détaillée dans le paragraphe ci-dessous.

### IV.1.3. Comparaison entre une opale inverse non dopée et une dopée

Afin de comparer la constitution d'une opale inverse non dopée à celle d'une dopée, on détermine expérimentalement la valeur du diamètre des trous d'air ( $D_{\text{trou}}$ ) et de l'indice de réfraction de la matrice solide ( $n_m$ ) de chacune d'elles. Pour cela, on mesure tout d'abord la transmittance en fonction de la longueur d'onde, en faisant varier l'angle d'incidence ( $\theta$ ) du faisceau lumineux sur la surface de l'opale en question. Ensuite, en se basant sur l'analyse et l'exploitation de la loi de Bragg présentée au chapitre III (paragraphe III.3.1) on trace  $\lambda_c^2$  en fonction de  $\sin^2(\theta)$ . Les résultats sont rassemblés sur la figure IV.8 et la figure IV.9 respectivement pour l'opale inverse non dopée et dopée ( $\Phi = 13\%$ ).

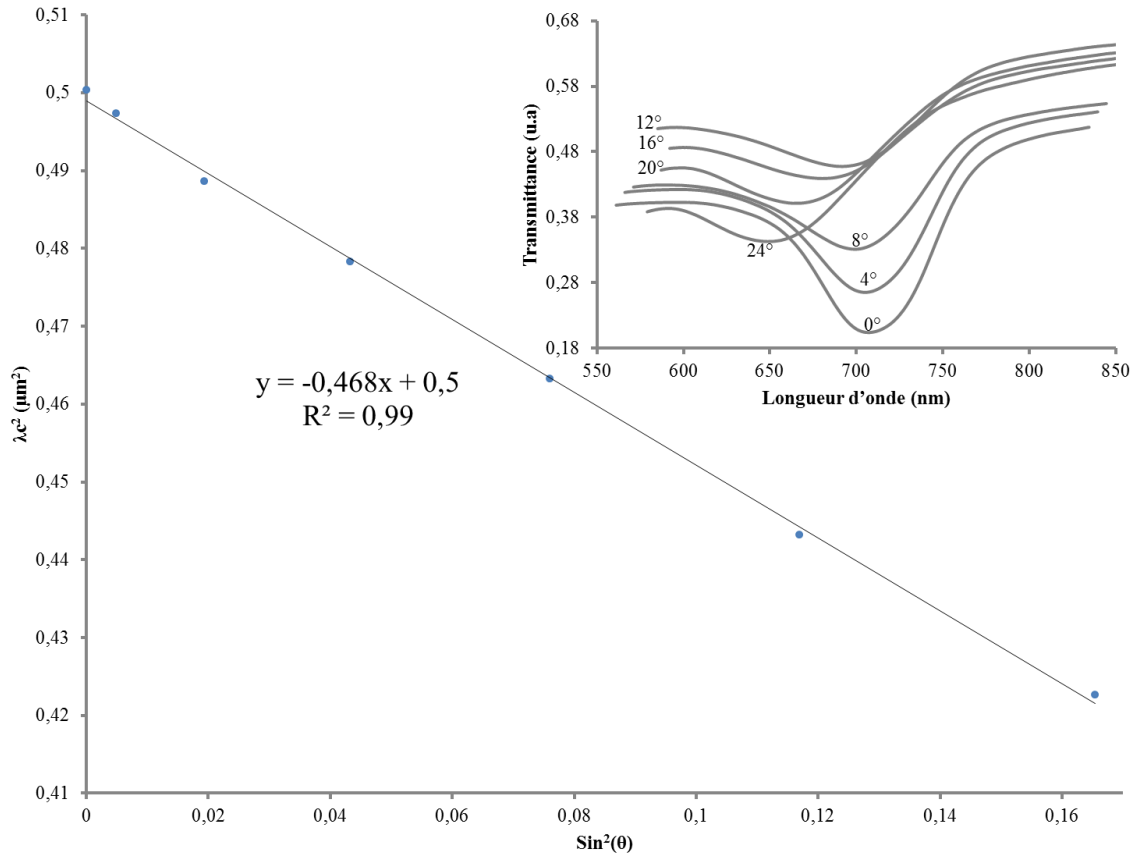


Figure IV.8 :  $\lambda_c^2$  ( $\mu\text{m}^2$ ) en fonction de  $\sin^2(\theta)$ . L'insert de la figure représente la transmittance en fonction de la longueur d'onde en modifiant l'angle d'incidence  $\theta$  d'une opale inverse non dopée.



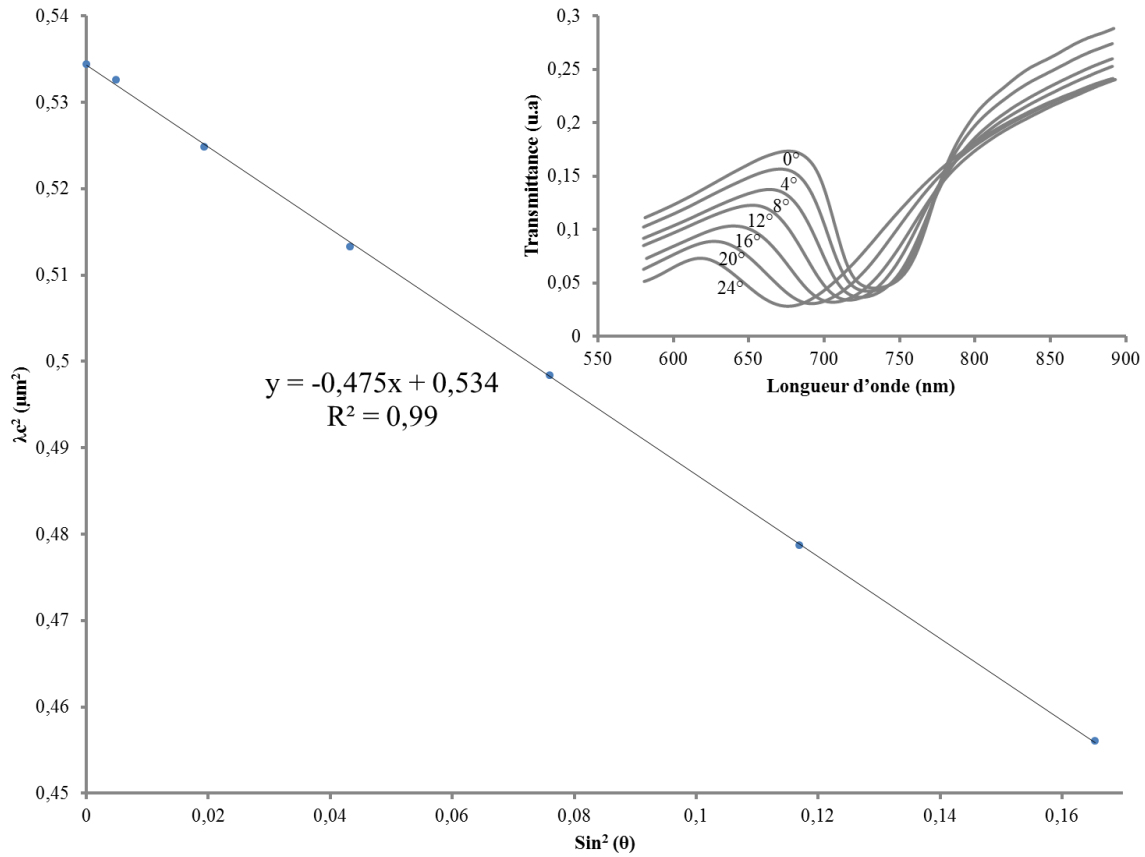


Figure IV.9 :  $\lambda_c^2$  ( $\mu\text{m}^2$ ) en fonction de  $\sin^2(\theta)$ . L'insert de la figure représente la transmittance en fonction de la longueur d'onde en modifiant l'angle d'incidence  $\theta$  d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 13\%$ ).

La valeur de l'angle d'incidence  $\theta$  de la lumière est modifiée entre  $0^\circ$  et  $24^\circ$ . Dans les deux cas, l'opale directe est élaborée à partir de microbille de 450 nm. On constate pour les deux types d'opales que lorsque la valeur de  $\theta$  augmente, la profondeur de la BIP diminue, et la position centrale de la BIP se déplace vers des valeurs de longueurs d'ondes inférieures. Egalement, le niveau de la transmittance de l'opale inverse non dopée augmente en augmentant  $\theta$  puis diminue à partir de  $12^\circ$ . Pour l'opale inverse dopée, le niveau de la transmittance diminue en augmentant  $\theta$ .

L'évolution linéaire de  $\lambda_c^2$  en fonction de  $\sin^2(\theta)$  pour les deux types d'opales obéit à l'équation :

$$\lambda_c^2 = -\frac{8}{3}D_{\text{trou}}^2\sin^2\theta + \frac{8}{3}D_{\text{trou}}^2n_{\text{eff}}^2 \quad \text{Equation IV. 5}$$

La pente de l'équation IV.5 permet donc de calculer la valeur du diamètre des trous d'air ( $D_{\text{trou}}$ ). D'où,  $D_{\text{trou}} = 419$  nm pour l'opale inverse non dopée et 421 nm pour la dopée. On remarque qu'une variation de l'ordre de 30 nm est observée par rapport à la valeur du diamètre des microbilles de l'opale directe. Cette variation est due au phénomène de rétrécissement de la structure déjà reporté dans la littérature [17].

L'ordonnée à l'origine de l'équation IV.5 permet de calculer l'indice de réfraction moyen de la structure ( $n_{\text{eff}}$ ). D'où,  $n_{\text{eff}} = 1,03$  pour l'opale inverse non dopée et 1,06 pour la dopée. En utilisant ces deux valeurs et en considérant que la fraction volumique occupée par la matrice solide est égale à 0,26, on détermine l'indice de réfraction de la matrice solide ( $n_m$ ) pour chaque opale. D'où,  $n_m = 1,12$  pour la matrice de silice non dopée et 1,22 pour la dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt ( $\Phi = 13\%$ ). Comme détaillé dans le paragraphe IV.1.2.2, on remarque que la valeur de l'indice de réfraction de la matrice solide de l'opale inverse dopée est supérieure à celle du non dopée. Mais, les valeurs 1,12 et 1,22 sont respectivement inférieures à 1,38 et 1,64 (figure IV.6), indices de réfraction respectifs de la matrice de silice non dopée et dopée, mesurés sur des couches de référence. Cette différence peut être due à la porosité de la matrice solide au sein de l'opale inverse.

L'ensemble des résultats détaillés dans cette première partie confirme la bonne qualité structurale et optique de nos opales, notamment celle de nos opales inverses dopées. L'ensemble des résultats de la caractérisation magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 3D sera traité dans la deuxième partie.

## **IV.2. Propriétés magnéto-optiques des opales inverses dopées**

La caractérisation magnéto-optique des opales inverses dopées est réalisée en utilisant les bancs de mesure PEA et PEMA. Le premier paragraphe est consacré à la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde et du champ magnétique appliqué pour le matériau magnéto-optique composite déposé sur un substrat de verre. Cette mesure joue le rôle de la référence. Le deuxième paragraphe surligne le caractère magnéto-optique de nos opales inverses dopées en présentant pour une longueur d'onde définie, la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué. Le troisième paragraphe traite des effets magnéto-optiques de nos cristaux magnéto-photoniques 3D. Pour cela, les modifications spectrales, par rapport à la référence, de la rotation et de l'ellipticité Faraday sont présentées et interprétées. L'effet que rapportent ces modifications spectrales sur le facteur de mérite est abordé dans le dernier paragraphe de cette partie.

### **IV.2.1. Caractère magnéto-optique du matériau composite**

Le matériau magnéto-optique composite, développé au laboratoire LT2C, est formé d'une matrice de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt. La concentration volumique en nanoparticules magnétiques dans la matrice solide des opales inverses dopées varie selon la concentration volumique initiale en nanoparticules magnétiques dans le ferrofluide et le pourcentage du ferrofluide dans la solution utilisée pour élaborer nos cristaux magnéto-photoniques 3D. De ce fait, lors de l'imprégnation des opales directes, on dépose parallèlement sur un substrat de verre une couche témoin du matériau magnéto-optique composite utilisé. Les mesures de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde et du champ magnétique appliqué de cette couche magnéto-optique constituent nos références. On peut calculer la concentration volumique en nanoparticules magnétiques  $\Phi(\%)$  de la couche magnéto-optique témoin, et donc en conséquence de l'opale inverse dopée en question, en appliquant la formule :

$$[\theta_F(^{\circ}/\text{cm})]_{820\text{nm}} = [\theta_F(^{\circ}/\text{cm})_{1\%}]_{820\text{nm}} \cdot \Phi(\%) \quad \text{Equation IV. 6}$$

Avec  $[\theta_F(^{\circ}/\text{cm})]_{820\text{nm}} = [\theta_F(^{\circ})]_{820\text{nm}}/h(\text{cm})$  la rotation Faraday spécifique à 820 nm de la couche magnéto-optique témoin ( $h$  est l'épaisseur de la couche magnéto-optique), et  $[\theta_F(^{\circ}/\text{cm})_{1\%}]_{820\text{nm}} = 166,67$  celle d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 1\%$ ).

La figure IV.10 représente l'amplitude à saturation de la rotation Faraday ( $\theta_S$ ) en fonction de la longueur d'onde d'une couche magnéto-optique où  $\Phi = 8\%$ . L'insert de la figure montre la rotation Faraday en fonction du champ magnétique appliqué pour une longueur d'onde égale à 820 nm. Cette courbe d'hystérésis souligne le caractère non-réciproque de la rotation Faraday. Ainsi, la différence entre les amplitudes à saturation est égale à  $2\theta_S$ .

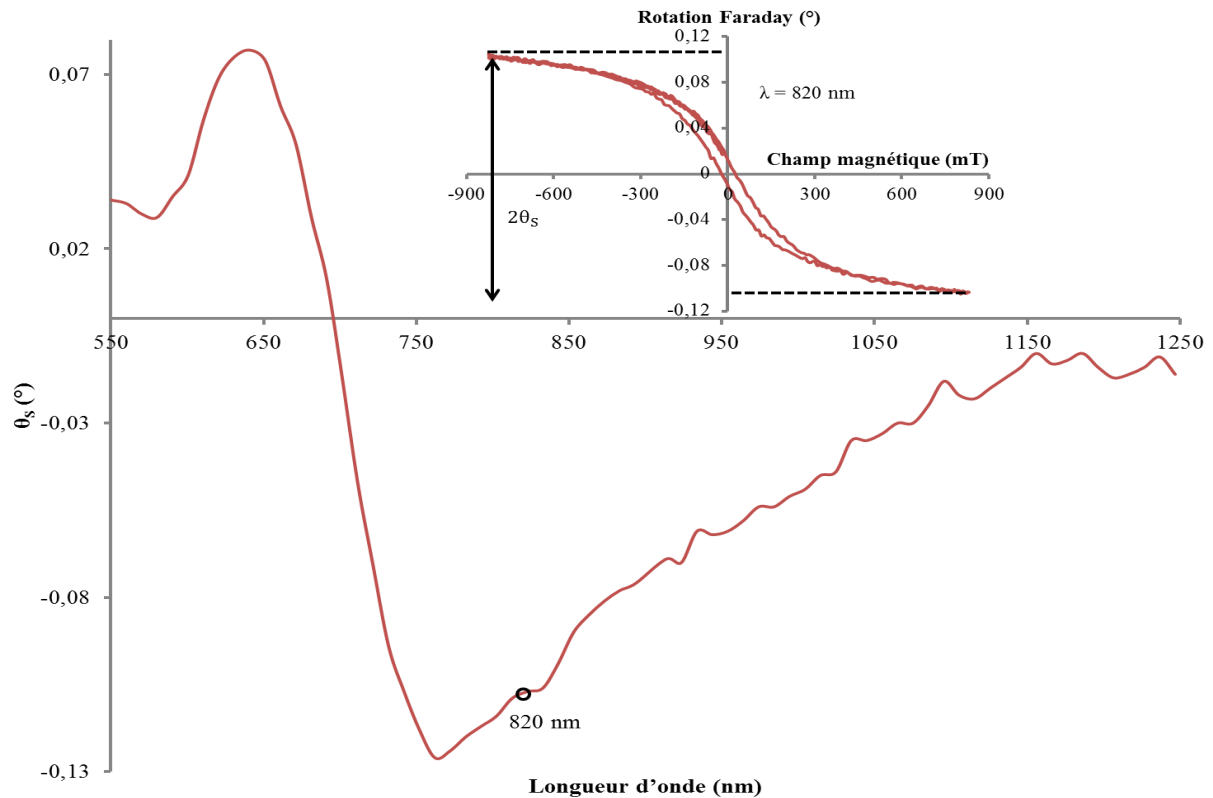


Figure IV.10 :  $\theta_S$  ( $^{\circ}$ ) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une couche magnéto-optique où  $\Phi = 8\%$ . L'insert de la figure montre  $\theta_F$  ( $^{\circ}$ ) en fonction du champ magnétique appliqué (mT) pour une longueur d'onde égale à 820 nm.

Cette figure montre que la valeur de la rotation Faraday est maximale pour une longueur d'onde égale à 750 nm.

La figure IV.11 représente l'amplitude à saturation de l'ellipticité Faraday ( $\epsilon_S$ ) en fonction de la longueur d'onde de la même couche magnéto-optique. L'insert de la figure montre l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué pour une longueur d'onde égale à 820 nm. Ainsi, la différence entre les amplitudes à saturation est égale à  $2\epsilon_S$ .

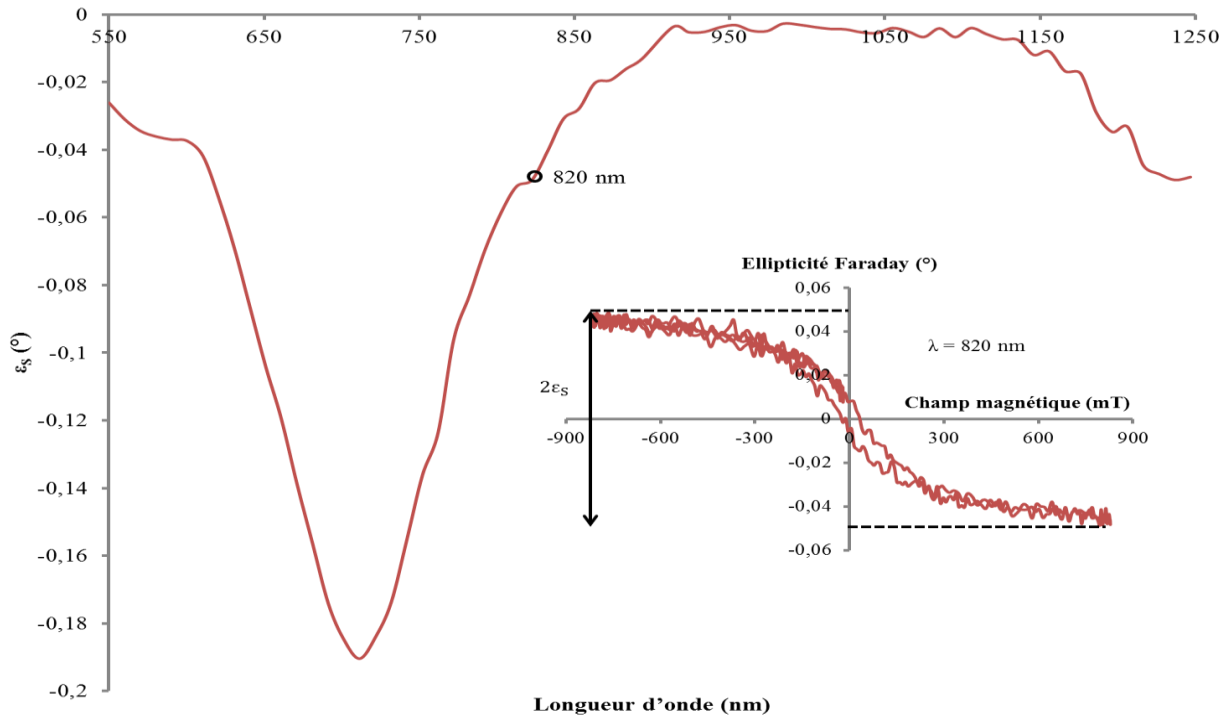


Figure IV.11 :  $\epsilon_S$  (°) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une couche magnéto-optique où  $\Phi = 8\%$ . L'insert de la figure montre  $\epsilon_F$  (°) en fonction du champ magnétique appliqué (mT) pour une longueur d'onde égale à 820 nm.

Cette figure montre que la valeur de l'ellipticité Faraday est maximale pour une longueur d'onde égale à 700 nm.

Les figures de  $\theta_S$  (°) (figure IV.10) et de  $\epsilon_S$  (°) (figure IV.11) mettent en évidence le caractère magnéto-optique du matériau composite non structuré. Ces courbes représentent la référence pour les mesures réalisées sur les cristaux magnéto-photoniques 3D.

#### IV.2.2. Caractère magnéto-optique des opales inverses dopées

En utilisant le banc PEMA, le caractère magnéto-optique des opales inverses dopées est vérifié en mesurant au même endroit la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué. La procédure consiste à fixer la valeur de la longueur d'onde souhaitée par le monochromateur et à varier progressivement le champ magnétique de l'électroaimant dans la gamme [-0,8 T ; 0,8 T]. Les figures IV.12 et figure IV.13 représentent respectivement la rotation et l'ellipticité Faraday d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ) non. Le diamètre des microbilles de l'opale directe est de 450 nm. L'insert des figures montrent la transmittance en fonction de la longueur d'onde au même endroit de mesure.

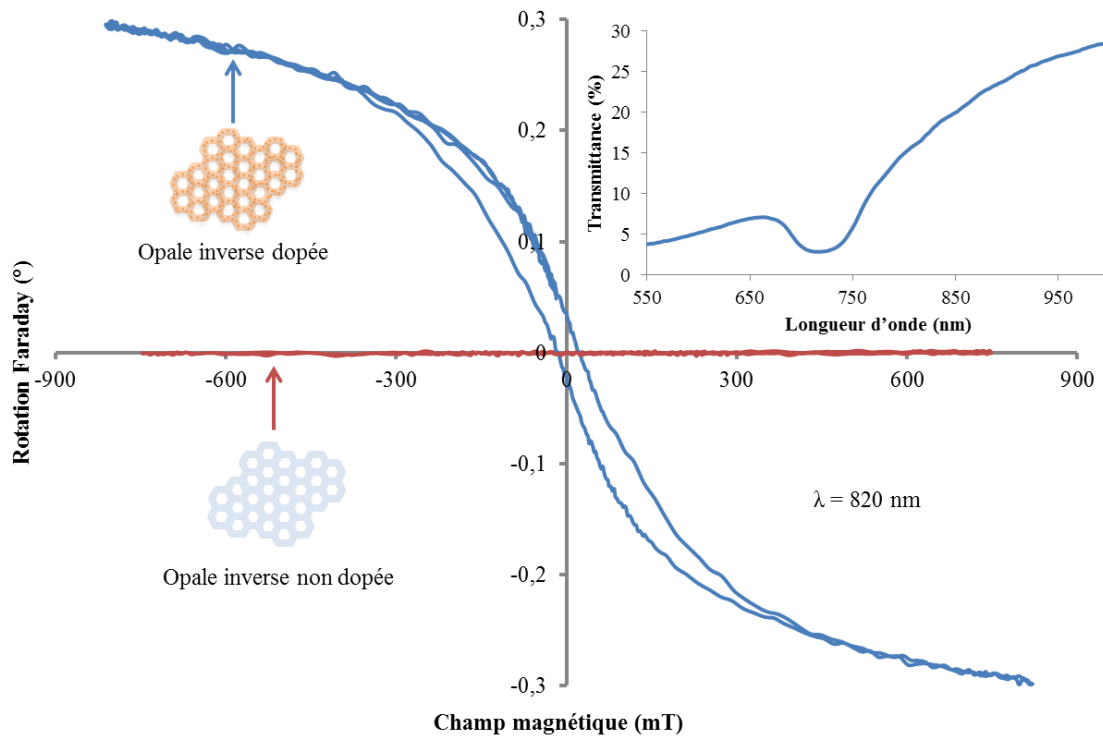


Figure IV.12 : Rotation Faraday (°) en fonction du champ magnétique appliqué (mT) pour une longueur d'onde de 820 nm d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ) et non. L'insert de la figure montre la transmittance en fonction de la longueur d'onde de l'opale inverse dopée.

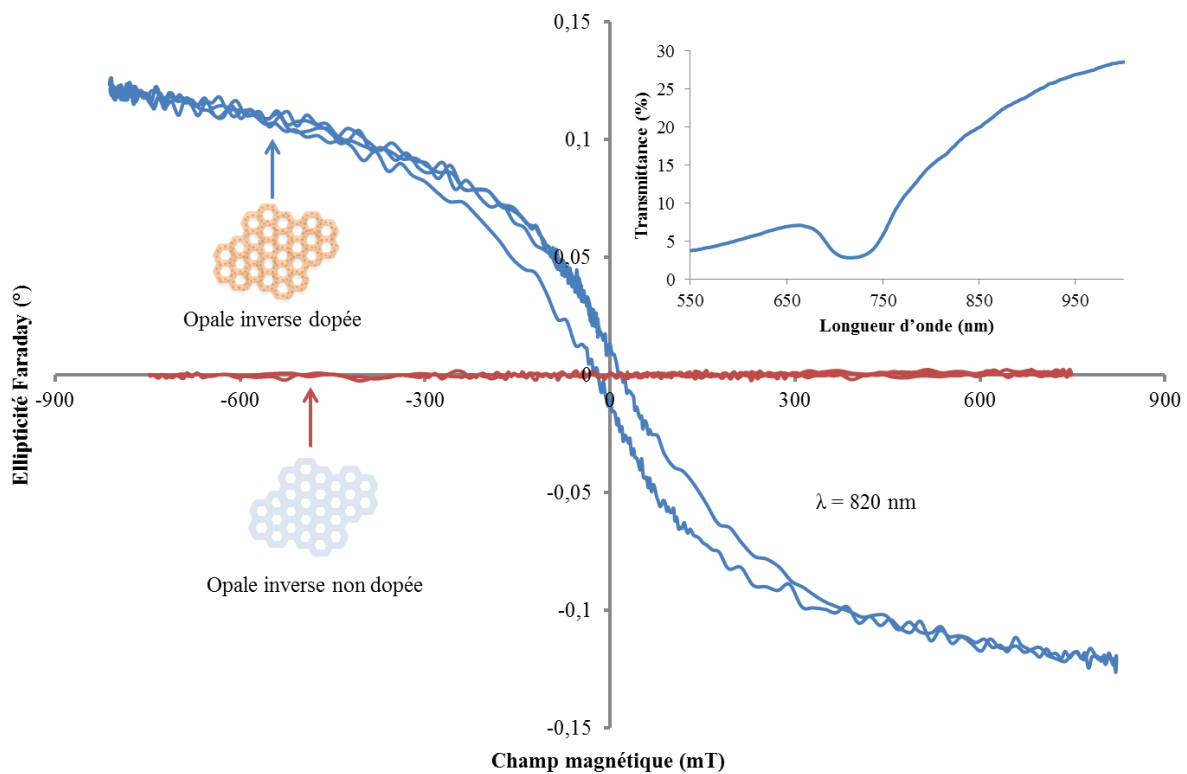


Figure IV.13 : Ellipticité Faraday (°) en fonction du champ magnétique appliqué (mT) pour une longueur d'onde de 820 nm d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ) et non. L'insert de la figure montre la transmittance en fonction de la longueur d'onde de l'opale inverse dopée.

Le caractère magnéto-optique de l'opale inverse dopée est mis en évidence en comparant le comportement de la rotation et de l'ellipticité Faraday de l'opale inverse dopée à celui d'une opale non dopée. Comme le montre les deux figures, la rotation et l'ellipticité Faraday de l'opale inverse dopée présentent un caractère non-réciproque. En effet, en modifiant la direction du champ magnétique, le sens de la rotation et de l'ellipticité Faraday sont modifiés. Par contre, pour une opale non dopée, la valeur de la rotation et de l'ellipticité Faraday sont nulles. L'effet non-réciproque confirme la présence des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans la matrice solide de silice de l'opale inverse dopée. Et, les cycles d'hystérésis résultent des caractéristiques magnétiques des nanoparticules de ferrite de cobalt qui se comportent comme des dipôles magnétiques durs [77]. L'ensemble de ces résultats confirme l'efficacité de notre technique d'élaboration à réaliser des cristaux magnéto-photoniques 3D.

La figure IV.14 montre pour différentes longueurs d'ondes, la rotation Faraday en fonction du champ magnétique appliqué d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ) et d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ). Pour chaque structure, les mesures sont réalisées au même endroit. Le diamètre des microbilles de l'opale directe est de 450 nm. La transmittance en fonction de la longueur d'onde à l'endroit de mesure de l'opale inverse dopée est également représentée sur la figure.

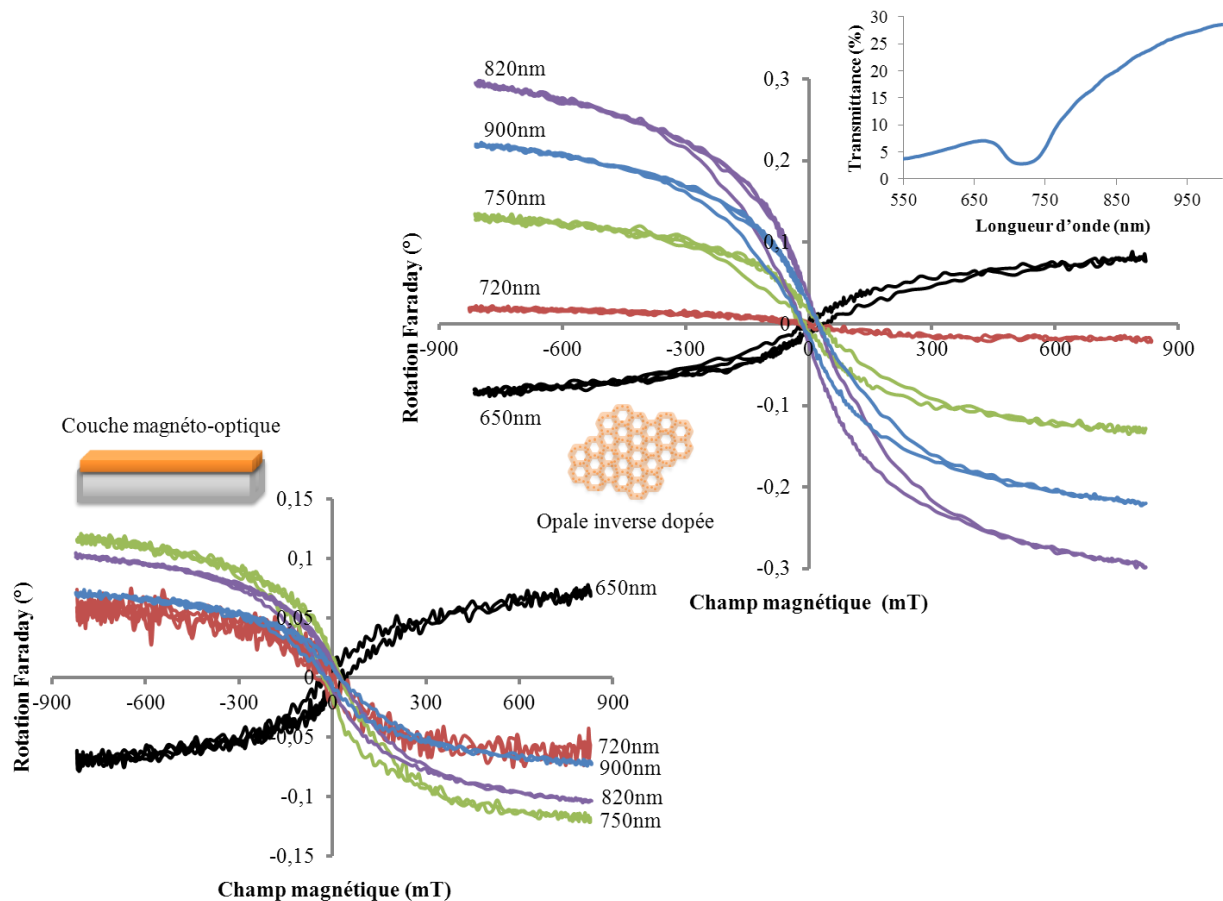


Figure IV.14 : Rotation Faraday (°) en fonction du champ magnétique appliqué (mT) pour les longueurs d'ondes de 650 nm, 720 nm, 750 nm, 820 nm et 900 nm d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ) et d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ). La figure montre en haut à droite la transmittance en fonction de la longueur d'onde de l'opale inverse dopée.

On remarque que pour chaque valeur de longueur d'onde, l'amplitude de la courbe représentant la rotation Faraday ainsi que le sens de cette dernière varient. Ces variations doivent suivre l'allure spectrale de la rotation Faraday, représentée dans la figure IV.10. Cela est vérifié pour la couche magnéto-optique et non vérifié pour l'opale inverse dopée. En effet, la valeur maximale de la rotation Faraday est obtenue à 750 nm et 820 nm respectivement pour la couche magnéto-optique et l'opale inverse dopée. Cela indique une modification spectrale de la rotation Faraday qui ne représente plus son maximum à 750 nm. On peut conclure que la structuration périodique 3D du matériau magnéto-optique composite conduit à une modification spectrale de l'effet magnéto-optique. Ces modifications sont détaillées dans le paragraphe suivant.

### IV.2.3. Modifications spectrales de l'effet magnéto-optique

Afin d'étudier l'effet Faraday du matériau magnéto-optique composite structuré en cristal magnéto-photonique 3D, on réalise les mesures spectrales de la transmittance, la rotation et l'ellipticité Faraday en utilisant les bancs de mesure PEA et PEMA.

Ainsi, la mesure spectrale de la rotation Faraday en utilisant le banc PEA consiste tout d'abord à mesurer l'intensité lumineuse en fonction de la longueur d'onde respectivement en absence et sous deux directions opposées du champ magnétique. Ensuite, la valeur de la rotation Faraday est calculée par la formule suivant :

$$\theta_F(^{\circ}) = \frac{180}{\pi} \left( \frac{I^+ - I^-}{4I^0} \right) \quad \text{Equation IV. 7}$$

Où  $I^+$ ,  $I^-$  et  $I^0$  sont respectivement les valeurs de l'intensité lumineuse pour un champ magnétique positif, un champ négatif et en absence du champ.

Pour le banc polarimétrique PEMA, la procédure consiste à déterminer pour chaque longueur d'onde la valeur de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué. Ensuite, les valeurs de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde sont déduites à partir des amplitudes à saturation des cycles d'hystérésis. La calibration qui permet de déterminer les valeurs de rotation et d'ellipticité Faraday est détaillée dans le chapitre III (paragraphe III.3.2.2).

Dans ce qui suit, les résultats des mesures spectrales de la rotation et de l'ellipticité Faraday sont détaillés et analysés. Ainsi, le premier sous paragraphe traite des résultats concernant la rotation Faraday et le deuxième sous paragraphe traite de ceux concernant l'ellipticité Faraday.

#### IV.2.3.1. Rotation Faraday

On mesure la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde dans le but d'évaluer les modifications que rapporte la structuration périodique 3D du matériau composite à cet effet magnéto-optique. L'objectif est ainsi d'examiner si une exaltation se produit en bords de la BIP comme le prédit la théorie exposée au chapitre II. Les mesures de la rotation Faraday sont effectuées sur les bancs PEA et PEMA.

La figure IV.15 représente en trait plein la rotation Faraday ( $^{\circ}$ ) et la transmittance en fonction de la longueur d'onde, mesurées sur le banc PEA, d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 13\%$ ). La figure représente également en tirets la rotation Faraday (u.a) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ). L'insert de la figure représente les courbes des intensités en fonction de la longueur d'onde pour un champ magnétique positif, un champ négatif et en absence du champ, enregistrées par le spectromètre CCD Maya2000 Pro respectivement pour l'opale inverse dopée (courbe en trait plein) et la couche magnéto-optique de référence (courbe en tirets).

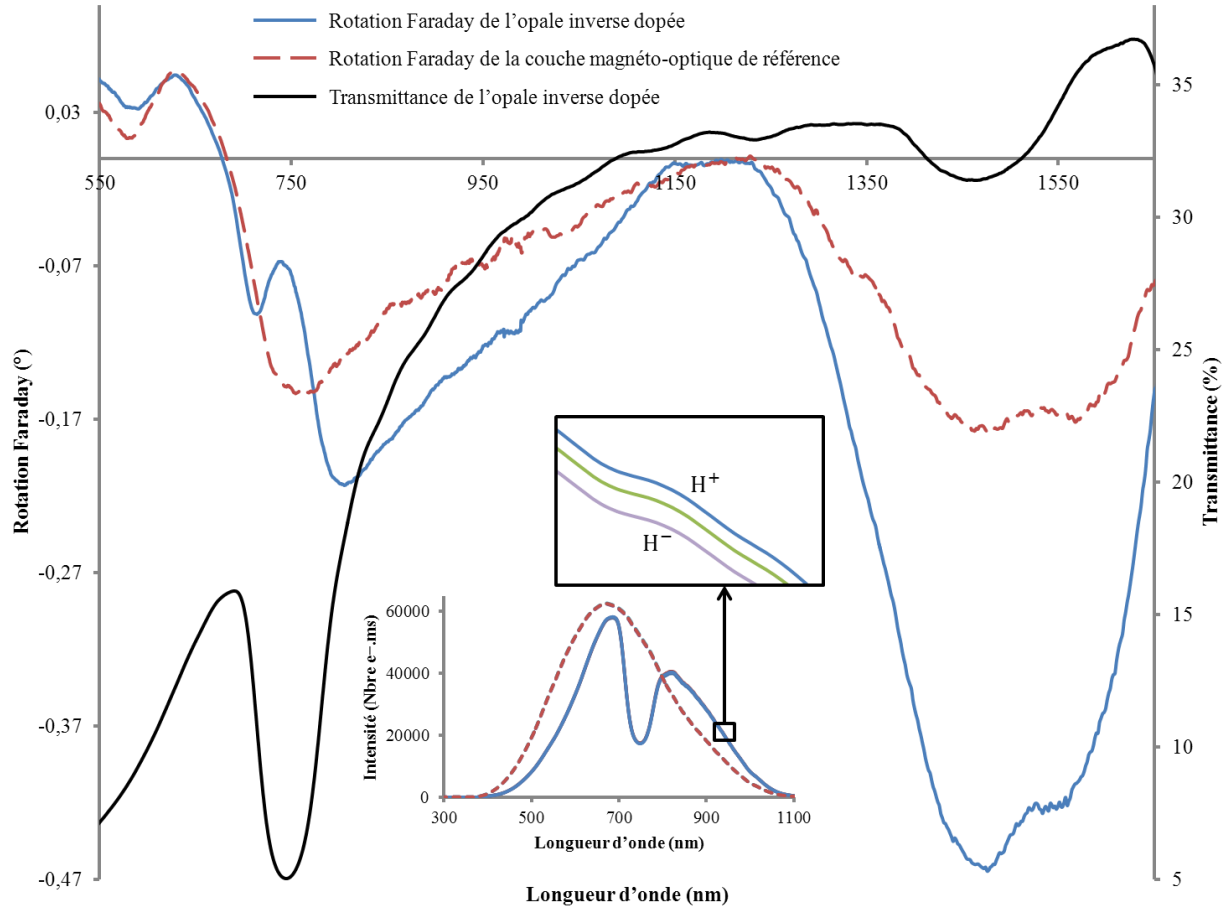


Figure IV.15 : Rotation Faraday ( $^{\circ}$ ) et transmittance (%) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une opale inverse dopée où  $\Phi = 13\%$ , et  $D_{sph}$  de l'opale directe = 450 nm (courbes en trait plein). La figure représente en tirets la rotation Faraday (u.a) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ). L'insert de la figure représente l'intensité (nombre d'électrons.ms) en fonction de la longueur d'onde (nm) pour un champ magnétique positif, négatif et en absence du champ pour l'opale inverse dopée (courbe en trait plein) et la couche magnéto-optique de référence (courbe en tirets).

On remarque que la mesure spectrale de l'intensité de l'opale inverse dopée est différente de la couche magnéto-optique de référence. La valeur de l'intensité est atténuée au niveau de la BIP où les ondes électromagnétiques sont réfléchies. On rappelle qu'en bords de la BIP, la vitesse de groupe des ondes électromagnétiques est nulle. La vitesse de groupe étant la vitesse à laquelle se propage l'énergie de l'onde électromagnétique, un ralentissement de cette vitesse se traduit par un renforcement de l'interaction entre l'onde et la matière. D'où l'intérêt d'évaluer les modifications de l'effet magnéto-optique au niveau de la BIP.



Vu les difficultés techniques qui nous empêchent de déterminer la valeur de la rotation Faraday spécifique ( $^{\circ}/\text{cm}$ ) à l'endroit de mesure, on ne peut pas comparer les amplitudes de la rotation Faraday du cristal magnéto-photonique 3D et de la couche magnéto-optique de référence. Par contre, on peut comparer leurs allures spectrales. Sur la gamme spectrale [550 nm – 1200 nm], on observe une modification spectrale significative au niveau de la BIP ( $\approx 745$  nm) de la courbe qui représente la rotation Faraday de l'opale inverse dopée par rapport à celle de la couche de référence. Deux pics et une atténuation sont observés respectivement en bords et au centre de la BIP. De ce fait, le maximum de rotation Faraday ne correspond plus à 750 nm mais il est décalé vers 820 nm. Cela est également illustré par la modification des amplitudes des cycles d'hystérésis de la figure IV.14. Le pic de rotation Faraday en bord supérieur de la BIP est nettement plus large que celui en bord inférieur, et s'atténue progressivement pour rejoindre, en dehors de la BIP, le comportement spectral de rotation Faraday de la couche de référence. Cette dernière observation rejoint ce qu'on a détaillé dans le chapitre II (paragraphe II.3.2.1) pour un cristal photonique 1D, où l'énergie électromagnétique est concentrée dans la couche à haut indice de réfraction, ici la matrice de silice dopée, en bord supérieur de la BIP. On observe également sur la gamme spectrale [1200 nm – 1650 nm], une deuxième modification du comportement spectral de rotation Faraday au niveau de la deuxième BIP ( $\approx 1465$  nm). On a l'impression que sur cette gamme spectrale le comportement spectral de rotation Faraday est amplifié, chose qu'on ne peut pas confirmer pour le moment vu que le banc PEA n'est pas proprement calibré. L'ensemble de ces modifications spectrales est évidemment due à l'arrangement périodique 3D de l'opale inverse dopée.

La rotation Faraday est également mesurée en utilisant le banc polarimétrique PEMA. Ce dernier permet de mesurer la rotation et l'ellipticité Faraday au même endroit.

La figure IV.16 représente en trait plein  $\theta_S$  ( $^{\circ}$ ) et la transmittance en fonction de la longueur d'onde, réalisées sur le banc PEMA, d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 8\%$ ). La figure représente également en tirets  $\theta_S$  ( $^{\circ}$ ) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ).

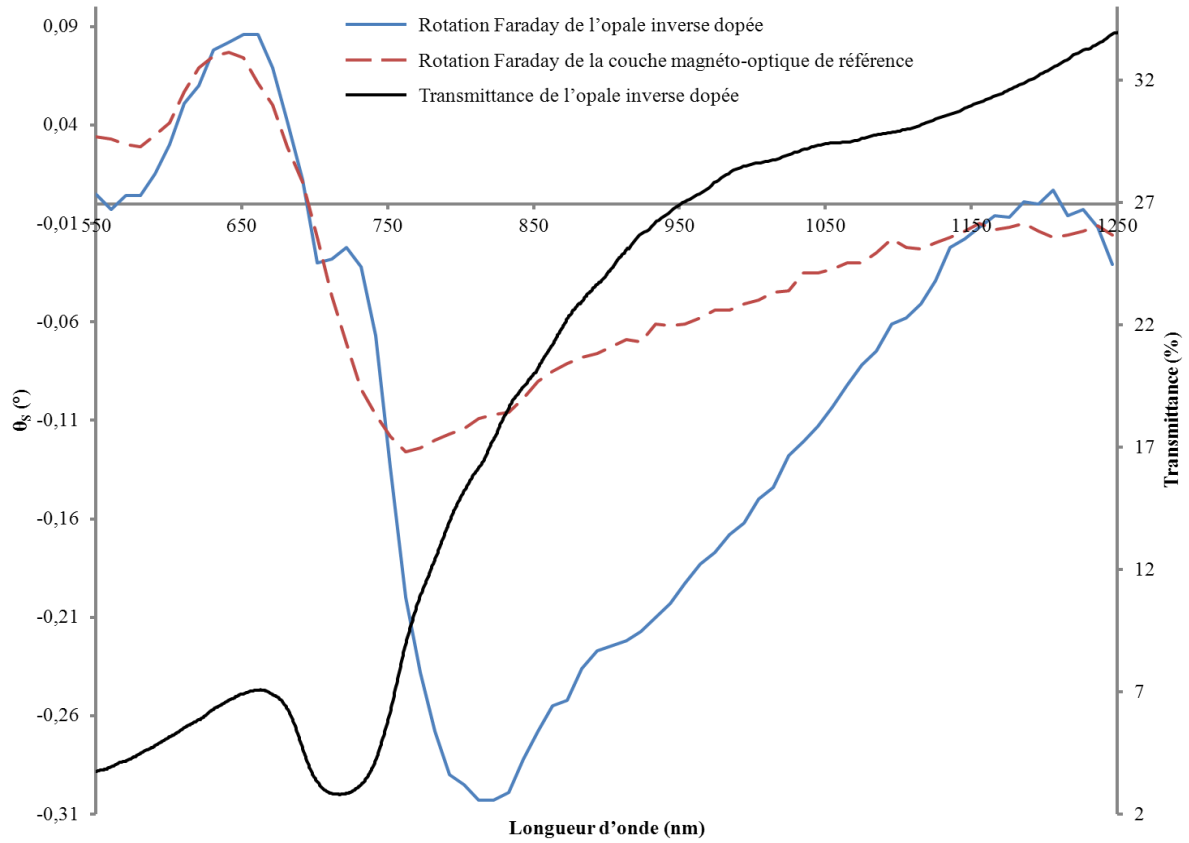


Figure IV.16 :  $\theta_S$  (°) et transmittance (%) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une opale inverse dopée où  $\Phi = 8\%$ , et  $D_{\text{sph}}$  de l'opale directe = 450 nm (courbes en trait plein). La figure représente en tirets  $\theta_S$  (°) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ).

Comme dans le cas de la mesure réalisée sur le banc PEA, on observe au niveau de la BIP le même type de modification spectrale de  $\theta_S$  de l'opale inverse dopée. En outre, on remarque que la position de la modification suit celle de la BIP. Néanmoins, on constate que la modification est visuellement plus importante sur le banc PEA.

La figure IV.17 montre un exemple de mesure de la transmittance en fonction de la longueur d'onde d'une opale inverse dopée en utilisant les bancs PEA et PEMA.

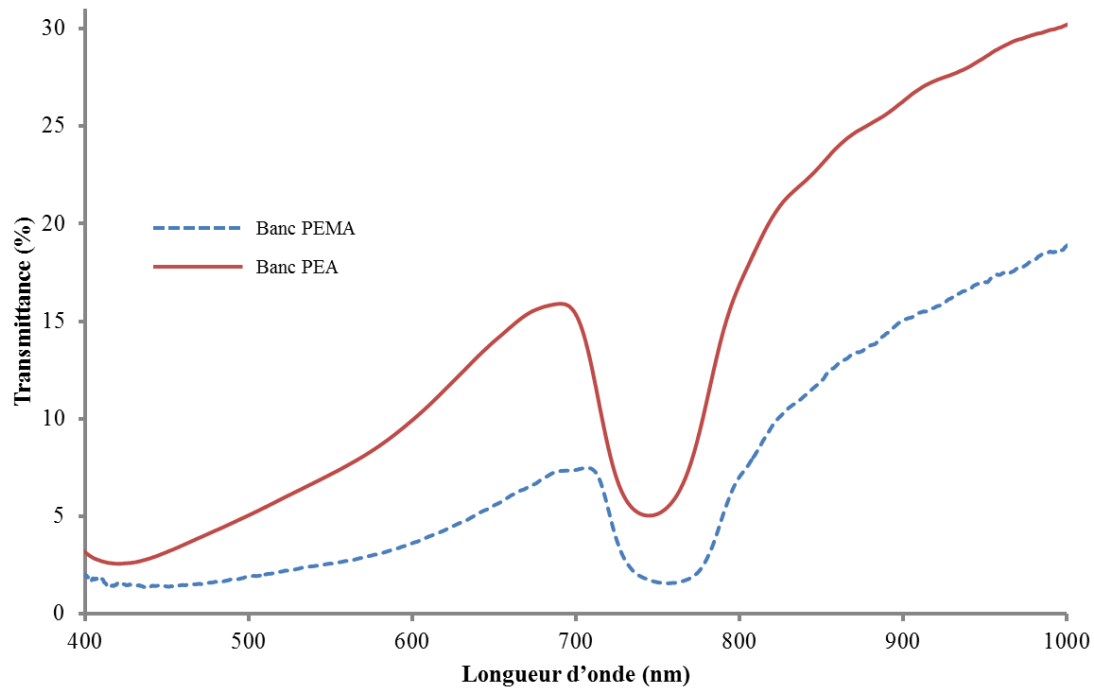


Figure IV.17 : Transmittance (%) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une opale inverse dopée en utilisant les bancs PEA et PEMA.

On remarque une différence entre le niveau de la transmittance et la profondeur de la BIP. Dans le détail, le niveau de la transmittance est supérieur de 10% et la BIP est deux fois plus profonde sur le banc PEA. De ce fait, on retient que la qualité de la mesure spectrale de transmittance est meilleure sur le banc PEA. On rappelle que pour ce dernier, on utilise un objectif pour focaliser le faisceau lumineux sur l'endroit de mesure. Le grandissement de cet objectif est de 6,3 et son ouverture numérique est de 0,2. De ce fait, la taille du spot lumineux focalisé est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . Tandis que dans le cas du banc PEMA, la taille du spot lumineux traversant l'échantillon est de 1 mm. Par conséquent, le spot lumineux sur le banc PEA couvre une zone de mesure plus petite. On rappelle que la qualité de l'arrangement périodique 3D est meilleure en termes d'homogénéité et absence des défauts structuraux une fois la zone de mesure diminue. Cela explique la différence de qualité de la modification spectrale observée sur les courbes représentant la rotation Faraday en utilisant l'un ou l'autre des bancs de mesure.

Le paragraphe suivant traite désormais des résultats expérimentaux concernant la mesure spectrale de l'ellipticité Faraday.

#### IV.2.3.2. Ellipticité Faraday

Comme pour la rotation Faraday, on réalise la mesure spectrale de l'ellipticité Faraday pour évaluer les modifications que rapporte la structuration périodique 3D du matériau magnéto-optique composite à cet effet magnéto-optique.

La figure IV.18 représente en trait plein  $\varepsilon_S$  (°) et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de l'opale inverse dopée de la figure IV.16. La figure représente également en tirets  $\varepsilon_S$  (°) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ).

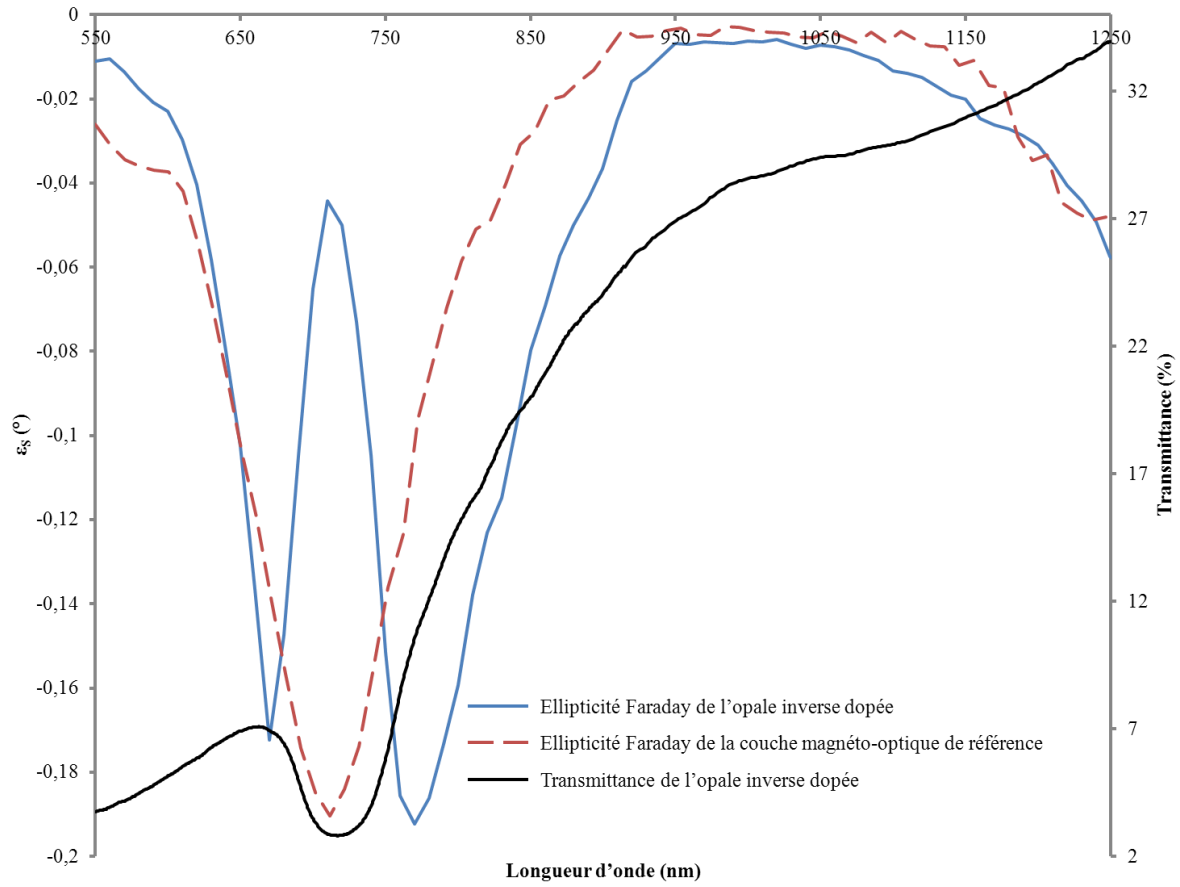


Figure IV.18 :  $\varepsilon_S$  (°) et transmittance (%) en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une opale inverse dopée où  $\Phi = 8\%$ , et  $D_{sph}$  de l'opale directe = 450 nm (courbes en trait plein). La figure représente en tirets  $\varepsilon_S$  (°) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 8\%$ ).

Comme dans le cas de la rotation Faraday, on ne peut pas comparer les amplitudes de l'ellipticité Faraday du cristal magnéto-photonique 3D et de la couche de référence. Par contre, on peut comparer leurs allures spectrales. En effet,  $\varepsilon_S$  de l'opale inverse dopée présente une nette modification spectrale au niveau de la BIP par rapport à la couche de référence. Cette modification spectrale est visiblement plus importante que dans le cas de  $\theta_S$ . Ainsi, on distingue deux pics en bords de la BIP et une atténuation au milieu de cette dernière. De ce fait, la valeur maximale de l'ellipticité Faraday ne correspond plus à 700 nm mais à une longueur d'onde en bords de la BIP. A l'extérieur de la cette dernière, le comportement de  $\varepsilon_S$  de l'opale inverse dopée et celui de la couche de référence sont identiques. Ces modifications spectrales sont évidemment dues à l'arrangement périodique 3D de l'opale inverse dopée.

Pour comparaison, on rappelle ci-dessous l'ensemble des résultats déjà publiés dans la littérature qui surlignent des modifications de l'effet magnéto-optique dans les cristaux magnéto-photoniques 3D.

La figure IV.19 représente les résultats des travaux de Koerdt *et al* [20] (figure IV.19.1) et ceux de Murai *et al* [21] (figure IV.19.2).

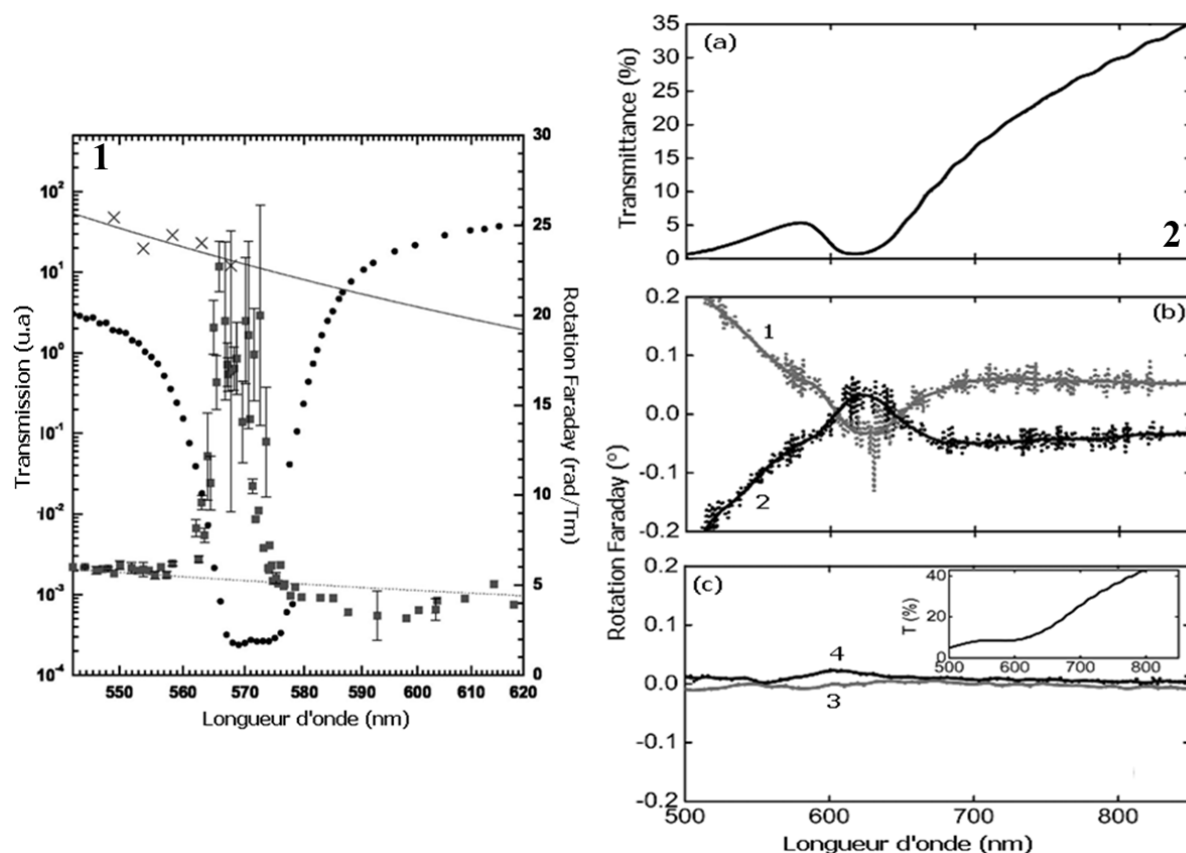


Figure IV.19 : 1) Les cercles, carrés, représentent respectivement la transmission, et rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde de la structure 3D réalisée. Les lignes en haut, et bas de la figure, représentent respectivement les valeurs théoriques de la rotation Faraday de la solution paramagnétique liquide non corrigée, corrigée par sa fraction volumique. Les croix représentent les valeurs expérimentales de la rotation Faraday de la solution paramagnétique liquide [20]. 2) a) Transmittance et b) rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde d'un cristal magnéto-photonique 3D en appliquant un champ magnétique extérieur de (1) -15 kOe, (2) +15 kOe, c) rotation Faraday d'une structure de référence non magnétique en appliquant un champ magnétique extérieur de (3) -15 kOe, (4) +15 kOe. L'insert de c montre la transmittance de la structure de référence [21].

Koerdt *et al* ont montré que la valeur de la rotation Faraday de la structure 3D réalisée présente une exaltation à l'intérieur de la BIP par rapport au comportement de la solution paramagnétique liquide corrigée par sa fraction volumique. Murai *et al* ont également observé une augmentation de la valeur de la rotation Faraday à l'intérieur de la BIP.

La figure IV.20 représente les résultats des travaux de Baryshev *et al* [23] (figure IV.20.1), de Pavlov *et al* [22] (figure IV.20.2) et ceux de Šimkienė *et al* [24] (figure IV.20.3).

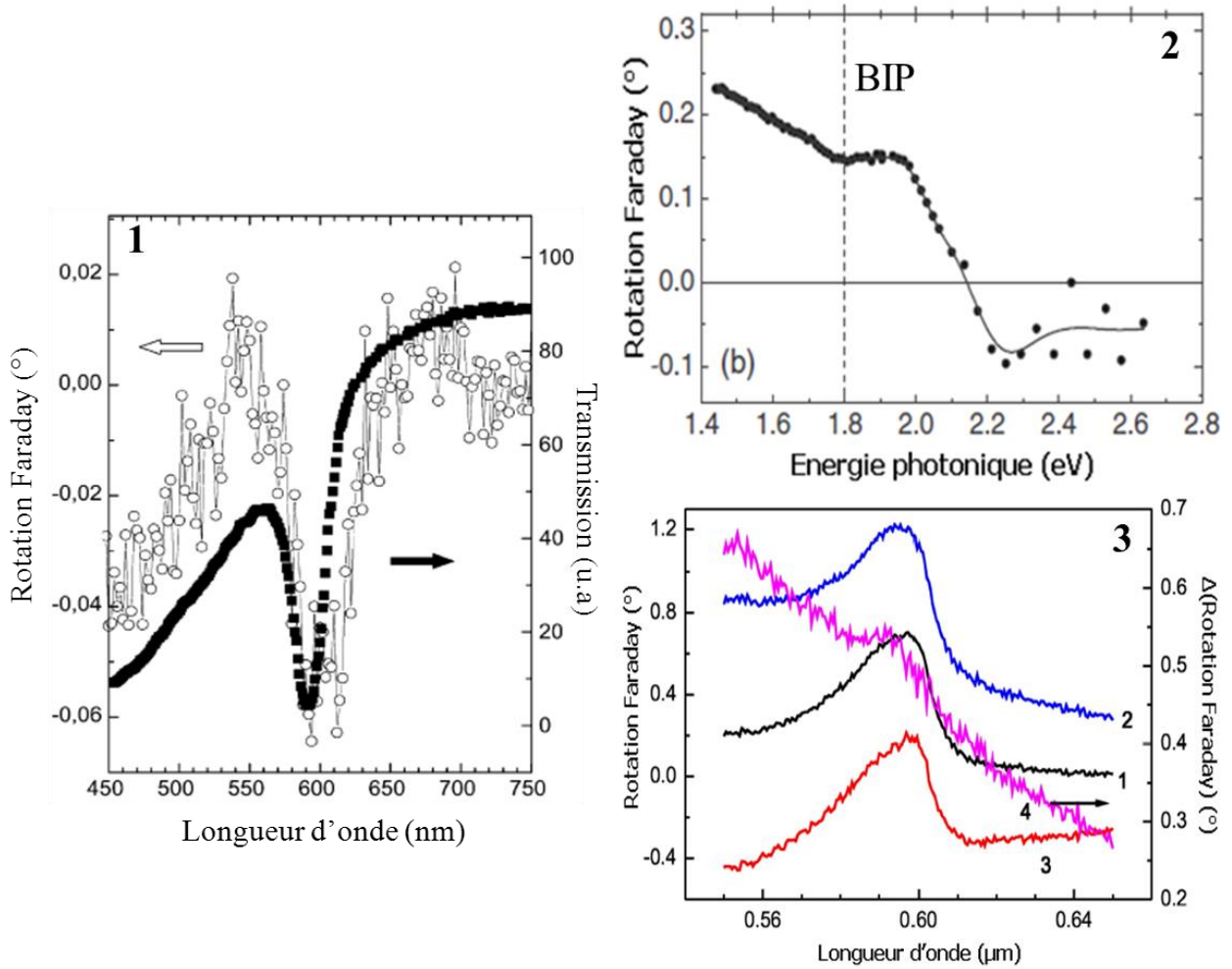


Figure IV.20 : 1) Transmission (carrés remplis) et rotation Faraday (cercles vides) en fonction de la longueur d'onde d'un opale-magnétite [23]. 2) a) Transmittance et b) rotation Faraday en fonction de l'énergie photonique d'une opale-magnétite dont les pores sont remplis à 70% [22]. 3) Rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde (1) sans l'application d'un champ magnétique, (2) en appliquant un champ magnétique de +350 mT, (3) en appliquant un champ magnétique de -350 mT, (4) la courbe de rotation Faraday résultante [24].

Baryshev *et al* ont montré un phénomène de résonnance sur la courbe de rotation Faraday d'une opale-magnétite. Cette modification spectrale est observée en bords de la BIP. En effet, un pic de rotation est observé en bord inférieur tandis qu'un autre pic de sens opposé est observé en bord supérieur de la BIP. D'après Pavlov *et al*, une modification de la rotation Faraday est observée au voisinage de la BIP, ce qui n'est pas clairement observable sur la figure IV.20.2. Egalement, d'après Šimkienė *et al*, la valeur de la rotation Faraday est exaltée au voisinage de la BIP (vers 605 nm), constatation non clairement observable sur la figure IV.20.3.

La figure IV.21 représente les résultats des travaux de Caicedo *et al* [25] (figure IV.21.1) et ceux de Volotinen *et al* [26] (figure IV.21.2).

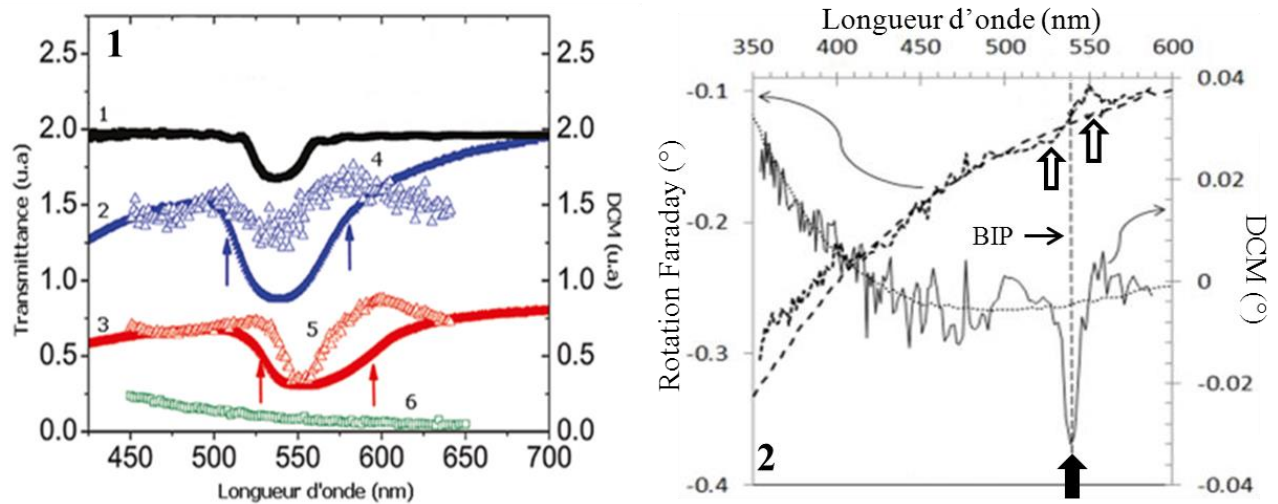


Figure IV.21 : 1) Transmittance (1) d'une opale non magnétique, (2) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx$  15 nm), (3) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx$  8 nm) et DCM (4) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx$  15 nm), (5) d'une opale magnétique (diamètre Ni  $\approx$  8 nm), (6) d'une couche de référence de Ni sur un substrat de verre en fonction de la longueur d'onde. Les flèches indiquent les zones où la valeur de l'effet magnéto-optique est exaltée [25]. 2) Rotation Faraday (°) et DCM (°) en fonction de la longueur d'onde (nm) de la structure 3D (en trait plein) et du substrat de saphir (en pointillé). Les flèches indiquent les positions des modifications spectrales observées [26].

Caicedo *et al* ont montré une modification du comportement spectral du DCM d'une opale inverse infiltrée avec des nanoparticules de Ni par rapport à une couche de référence de Ni sur verre. Cette modification spectrale se manifeste par la présence d'un pic de DCM en chaque bord de la BIP et d'une atténuation qui nous semble plus importante au centre de la BIP. Nos modifications spectrales de rotation et d'ellipticité Faraday ressemblent à l'allure de cette modification du DCM où on observe deux pics et une atténuation respectivement en bords et au centre de la BIP. Volotinen *et al* ont comparé la rotation Faraday et le DCM d'une structure 3D à celle d'un substrat de saphir. Ils ont montré deux pics de rotation de sens opposé en bords de la BIP dont l'amplitude de celui en bord supérieur est plus importante, et un pic de DCM au niveau du centre de la BIP.

En comparant nos résultats de caractérisation magnéto-optique à ceux publiés dans la littérature, on constate qu'on observe des modifications spectrales de rotation et d'ellipticité Faraday simultanément en bords et au centre de la BIP tandis que les autres résultats de la littérature montrent des modifications soit en bord soit au centre de la BIP. De plus, on note que l'allure de la modification spectrale de l'ellipticité Faraday (°) de nos opales inverses dopées ressemble à celle du DCM (u.a) reportée par Caicedo *et al* [25]. Par contre, nos mesures paraissent avoir une meilleure exaltation en bords de la BIP. Dans tous les cas, nos modifications spectrales de rotation et d'ellipticité Faraday nous paraissent plus importantes et présentent un meilleur rapport signal sur bruit que celles rapportées dans la littérature.

Afin d'améliorer la caractérisation magnéto-optique, de nouvelles modifications sur le banc polarimétrique PEMA paraissent nécessaires. Ces changements ainsi que les résultats obtenus sont détaillés dans le paragraphe suivant.



#### IV.2.4. Améliorations apportées à la caractérisation magnéto-optique

On rappelle que dans la configuration de mesure actuelle du banc polarimétrique PEMA, la taille du spot lumineux qui traverse l'échantillon est de 1 mm. Par ailleurs, comme expliqué au paragraphe IV.2.3.1, si on diminue la largeur de la zone de mesure, la qualité de l'arrangement périodique 3D sera bien entendu meilleure. Cette amélioration est due en grande partie à la diminution du nombre de défauts cristallins et à une meilleure homogénéité de la structure 3D. De ce fait, afin d'optimiser la caractérisation magnéto-optique, il est désormais nécessaire de mieux focaliser le spot lumineux sur la surface de l'échantillon. Malheureusement, cette action ne peut pas être réalisée car le spot lumineux doit passer à travers l'entrefer de l'électroaimant avant de se focaliser sur la surface de l'échantillon. Nous avons alors décidé de remplacer l'électroaimant par un aimant permanent, et deux objectifs ayant chacun un grandissement de 6,3 et une ouverture numérique de 0,2 sont placés de part et d'autre de l'échantillon. Cela permet de mieux focaliser le faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon et de mieux collecter l'intensité lumineuse par le détecteur. Expérimentalement, on varie progressivement la longueur d'onde, et on mesure au même endroit la rotation et l'ellipticité Faraday pour deux positions de sens opposé de l'électroaimant.

La figure IV.22 représente en noir et bleu la mesure de  $\theta_S$  (°) et de la transmittance (en insert) en fonction de la longueur d'onde d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 13\%$ ) respectivement sur le banc PEMA modifié et non. La figure représente également en rouge  $\theta_S$  (°) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ).

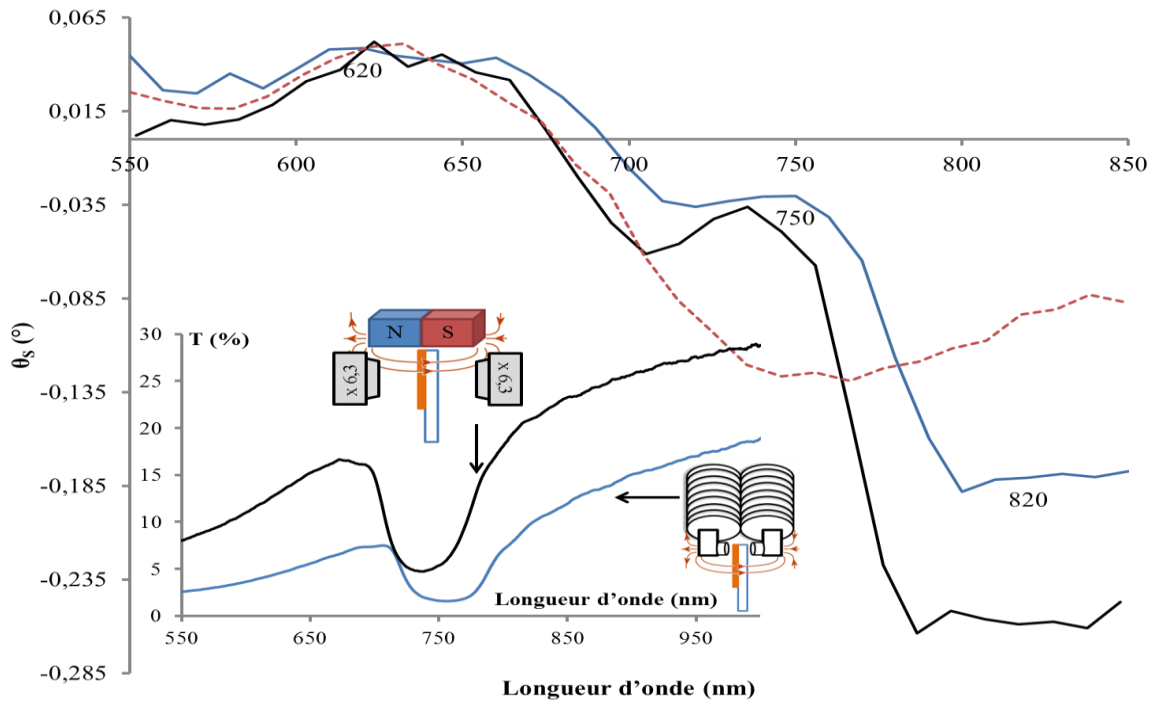


Figure IV.22 : la figure représente en noir et bleu la mesure de  $\theta_S$  (°) et de la transmittance (en insert) en fonction de la longueur d'onde d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 13\%$  et  $D_{sph}$  de l'opale directe = 450 nm) respectivement sur le banc PEMA modifié et non. La figure représente également en rouge  $\theta_S$  (°) d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ).



Sachant que les deux courbes noire et bleue de  $\theta_S$  montrent le même type de modification spectrale par rapport à la courbe en rouge, on remarque que l'allure de cette modification spectrale est visiblement mieux tracée dans le cas de la courbe en noire. Cette amélioration est également observée sur la qualité de la BIP où le niveau de la transmittance est augmenté de 10% de T et la profondeur de la BIP est doublée.

La figure IV.23 représente en noire  $\varepsilon_S$  (°) et la transmittance en fonction de la longueur d'onde de l'opale inverse dopée, mesurées sur le banc PEMA modifié. La figure représente également en rouge  $\varepsilon_S$  (°) de la couche de référence.

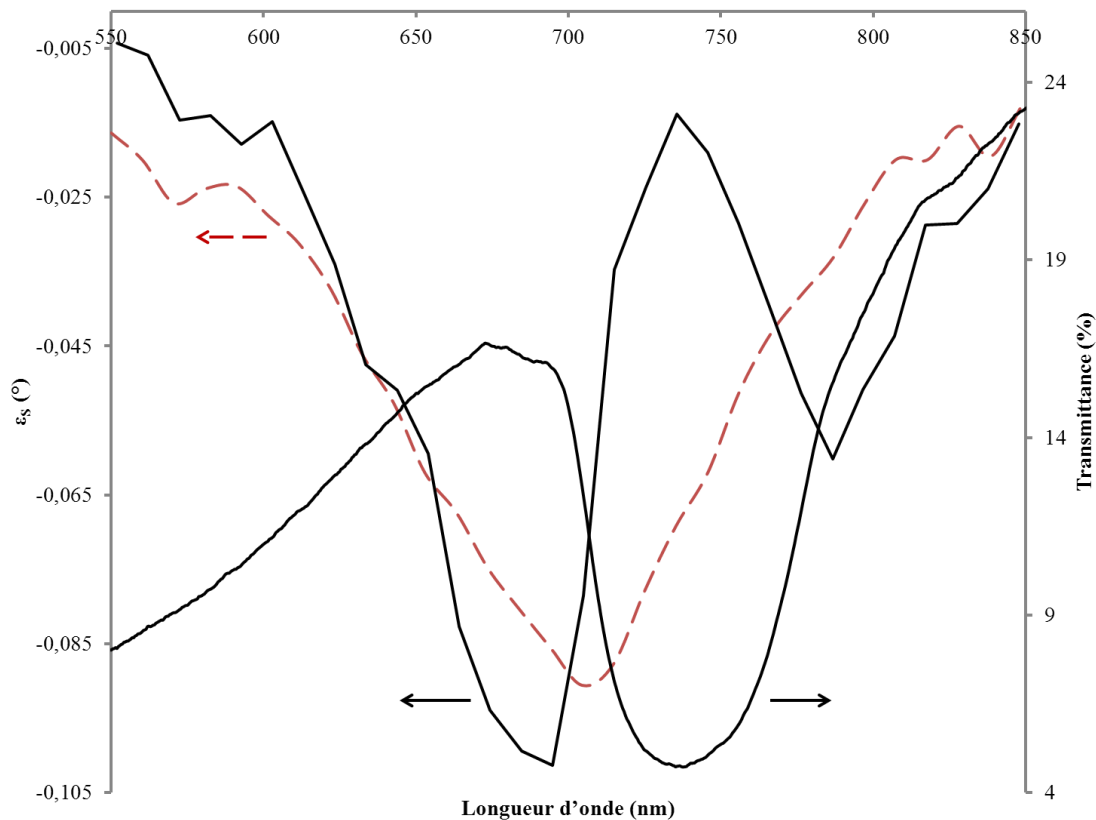


Figure IV.23 : La figure représente en noire  $\varepsilon_S$  (°) et la transmittance en fonction de la longueur d'onde (nm) de l'opale inverse dopée. La courbe en rouge représente  $\varepsilon_S$  (°) de la couche de référence.

Comme pour la rotation Faraday, on observe une modification spectrale sur la courbe de  $\varepsilon_S$  en noire par rapport à celle en rouge.

On conclut que pour améliorer la qualité de la caractérisation magnéto-optique des opales inverses dopée, l'idéal sera de pouvoir placer tout d'abord des objectifs de part et d'autre de l'échantillon respectivement pour focaliser au mieux le faisceau lumineux sur sa surface et récupérer le plus d'intensité lumineuse en sortie. Ensuite, de pouvoir utiliser l'électroaimant pour appliquer un champ magnétique contrôlable au voisinage de l'échantillon. Cette configuration de mesure nécessite que la focalisation du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon se manifeste au centre de l'entrefer de l'électroaimant. Cela implique une modification du chemin optique sur le banc PEMA. Pour l'instant, cette modification ne peut pas être mise en œuvre à cause des difficultés techniques.

L'influence de la modification spectrale de rotation Faraday sur le comportement du facteur de mérite du matériau magnéto-optique composite structuré en 3D, est détaillée dans le paragraphe suivant.

#### IV.2.5. Facteur de mérite

Le facteur de mérite est un facteur d'évaluation de la qualité des matériaux magnéto-optiques. Dans ce qui suit, on ne tient pas compte de la réflexion et on définit ce facteur comme le rapport entre la rotation Faraday et l'absorption  $\alpha = -\ln(T)$  où  $T$  est la transmission de l'opale inverse dopée.

La figure IV.24 représente le facteur de mérite et la transmittance en fonction de la longueur d'onde d'une opale inverse dopée ( $\Phi = 13\%$ ). L'insert de la figure compare la transmission de l'opale inverse dopée à celle d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ).

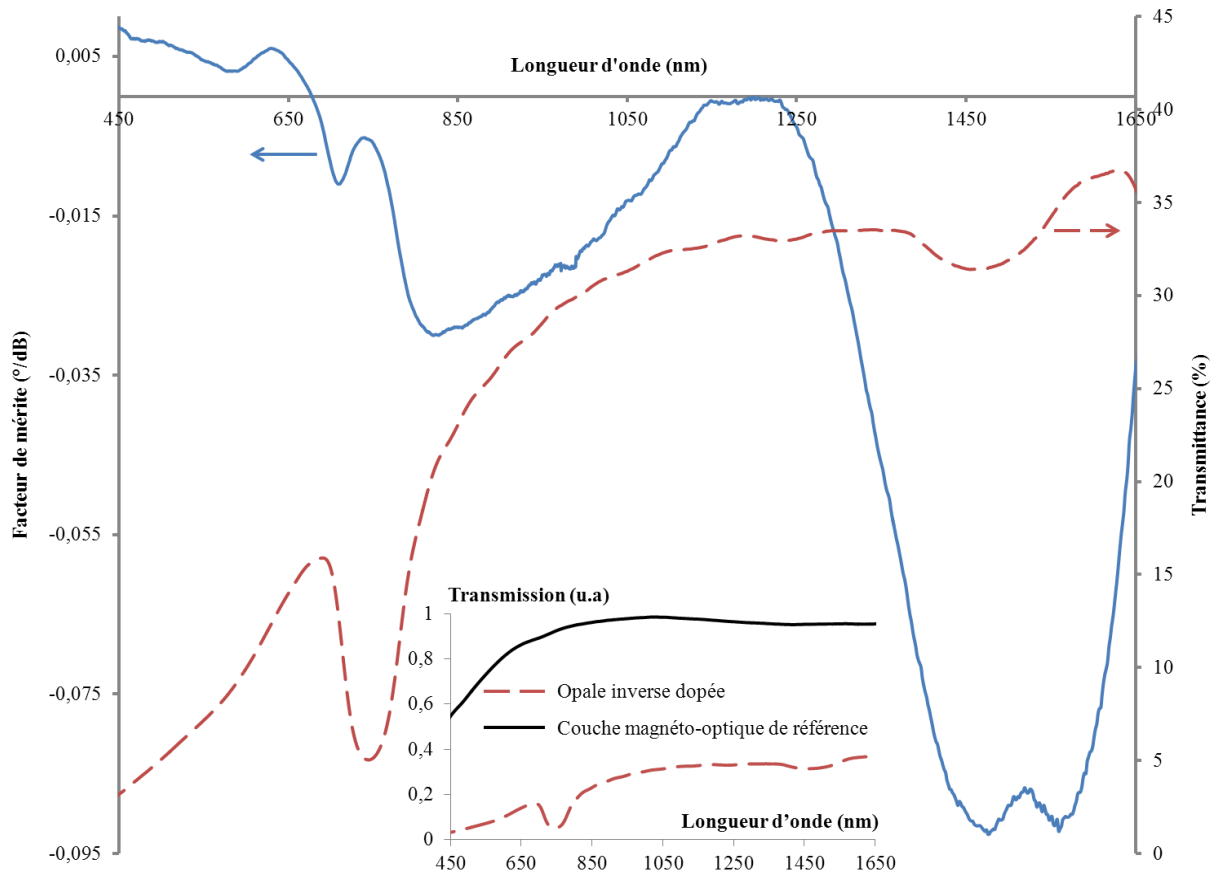


Figure IV.24 : Facteur de mérite ( $^{\circ}/\text{dB}$ ) et transmittance en fonction de la longueur d'onde (nm) d'une opale inverse dopée où  $\Phi = 13\%$  et  $D_{\text{sph}}$  de l'opale directe = 450 nm. L'insert de la figure compare la transmission (u.a) de l'opale inverse dopée à celle d'une couche magnéto-optique de référence ( $\Phi = 13\%$ ).

On remarque tout d'abord que l'allure générale de ce facteur de mérite est la même que celle d'une couche magnéto-optique non structurée (voir figure I.27), avec deux zones qui se distinguent : une autour de 800 nm et une seconde autour de 1400 nm avec une valeur 3 fois plus élevée. Par contre, la valeur du facteur de mérite de l'opale inverse dopée est partout

inférieure à celle de la couche de référence. Par exemple, dans la zone [1400 nm – 1500 nm] cette valeur est de l'ordre de  $-0,09^\circ/\text{dB}$  pour l'opale et de  $-1,5^\circ/\text{dB}$  pour la couche. Cette différence est due à la qualité structurale de l'opale inverse dopée qui n'est pas optimale, notamment à l'inhomogénéité de l'endroit de mesure vu la présence des défauts. Comme le montre l'insert de la figure IV.24, cela se manifeste par une chute du niveau de transmission de l'opale inverse dopée par rapport à la couche de référence. En effet, la structuration conduit à la formation de différents défauts cristallins, et comme nous l'avons vu au travers de l'insert de la figure IV.5, plus on dope, plus on perd en qualité. Ainsi, un important phénomène de diffusion est observé à la sortie du cristal magnéto-photonique 3D. En conséquence, le niveau de transmission chute considérablement, et affaiblit le facteur de mérite.

D'un autre côté, la figure IV.24 montre que la structuration 3D du matériau magnéto-optique composite conduit à une modification spectrale de la valeur du facteur de mérite dans la zone de la BIP. Cette modification est du même type que celles observées sur le comportement spectral de la rotation et de l'ellipticité Faraday.

Cette étude nous permet de conclure que la qualité structurale joue un rôle important sur la modification de la valeur du facteur de mérite.

### IV.3. Bilan et perspectives

Les travaux de cette thèse traitent de la structuration 3D du matériau magnéto-optique composite, développé au laboratoire LT2C et de l'impact de cette structuration sur le comportement spectral de l'effet Faraday (rotation et ellipticité) et du facteur de mérite magnéto-optique.

Une étude théorique a tout d'abord confirmé que la structuration 1D du matériau magnéto-optique composite peut conduire à une exaltation des valeurs de l'effet Faraday et du facteur de mérite. Du point de vue élaboration et comparativement aux travaux antérieurs, l'hydrophilisation du substrat de verre a amélioré la qualité structurale et optique des opales élaborées par la technique utilisée classiquement au laboratoire LT2C. Un taux de dopage en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt de l'ordre de 16% est également atteint. Cela a amélioré la réponse magnéto-optique des opales inverses dopées. En outre, l'application d'une procédure d'élaboration alternative qui s'inspire des travaux de Hatton *et al* [19] a amélioré d'avantage la qualité des opales inverses non dopées en termes d'homogénéité et de minimisation des défauts structuraux. Par contre, les opales inverses dopées fabriquées par cette dernière procédure ont une faible qualité.

L'étude systématique de l'effet Faraday dans les cristaux magnéto-photoniques 3D a montré une modification significative du comportement spectral de la rotation et de l'ellipticité Faraday. En détails, deux pics et une atténuation sont respectivement observés en bords et au centre de la BIP. Tandis qu'en dehors de cette dernière, le comportement spectral de l'opale inverse dopée est identique à celui de la couche magnéto-optique de référence. Cela est conforme aux attentes. Une modification du même type est montrée sur le comportement spectral du facteur de mérite, mais l'amplitude de celui-ci est réduite à cause d'effets de

diffusion importants. Il est ainsi difficile de parler de phénomène d'exaltation, mais l'augmentation des effets magnéto-optiques en bords de BIP semble aller en ce sens.

Sur la base des problèmes de diffusion liés aux défauts structuraux des opales obtenus il nous paraît judicieux de lancer une nouvelle approche de structuration qui permet de minimiser les défauts structuraux et ainsi diminuer les phénomènes de diffusion dans le cristal magnéto-photonique. Si la zone de mesure est plus homogène, la BIP sera plus profonde. Cela devrait amplifier les modifications spectrales de l'effet Faraday. Dans ce cadre, il nous paraît intéressant d'essayer tout d'abord une technique de structuration 1D par insolation UV d'une matrice sol-gel photopolymérisable [139]. Cela est apparemment compatible avec notre approche sol-gel. Pour pousser l'étude encore plus loin, on peut ensuite adapter cette technique afin de structurer en 3D le matériau en utilisant la polymérisation à deux photons [140]. L'intérêt de cette structuration 3D est la possibilité d'avoir une BIP complète tout en améliorant la qualité structurale.

Pour aller plus loin sur la caractérisation magnéto-optique, on peut améliorer le banc polarimétrique PEMA en trouvant un moyen pour insérer des objectifs de part et d'autre de l'échantillon tout en utilisant l'électroaimant pour mesurer l'effet Faraday en fonction du champ magnétique appliqué. Cette modification permettra d'améliorer nettement l'endroit de mesure et ainsi d'amplifier les phénomènes observés.

En supposant que les modifications spectrales présentées dans ce chapitre influent positivement sur l'exaltation de la valeur du facteur de mérite, dans une prochaine étape le dépôt d'une opale inverse dopée sur un guide par échange d'ions nous paraît intéressant. Cette manipulation permet de gagner en quantité d'effet magnéto-optique sur la longueur du guide. D'ailleurs, comme premier pas, on entame actuellement des essais pour réaliser le dépôt d'une opale inverse non dopée sur un guide par échange d'ions. En outre, comme la thématique générale de recherche de notre équipe se concentre autour de l'intégration sur verre des composants à effet non-réciproque, un essai d'intégration des cristaux magnéto-photoniques 3D peut constituer une perspective.

## IV.4. Conclusion

Ce chapitre a présenté les résultats expérimentaux de la caractérisation magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 3D. Tout d'abord, L'analyse des images MEB a montré que notre méthode d'élaboration conduit à fabriquer des opales de bonne qualité structurale. D'autre part, l'analyse optique a confirmé la bonne qualité optique de nos structures. Ainsi, l'évolution de la position de la BIP suit la loi de Bragg en variant la taille des microbilles de polystyrène ou la concentration volumique en nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt dans la matrice solide. Le caractère magnéto-optique des opales inverses dopées est ensuite mis en évidence. En effet, les courbes de mesure de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué présentent des cycles d'hystérésis et mettent en évidence un effet non-réciproque. L'étude spectrale de l'effet Faraday a montré des modifications significatives des spectres de la rotation et de l'ellipticité Faraday des opales inverses dopées. En détail, deux pics et une atténuation sont observés respectivement en bords

et au centre de la BIP. Tandis qu'en dehors de la BIP, le comportement spectral de la rotation et celui de l'ellipticité Faraday suivent celui de la couche de référence. Ces modifications nous paraissent plus importantes et présentent un meilleur rapport signal sur bruit que celles déjà rapportées dans la littérature [20-26]. Enfin, le comportement spectral du facteur de mérite montre des modifications similaires. Néanmoins, l'exaltation de la valeur de ce dernier est limitée par la faible qualité structurelle de l'opale.

Dans le but de minimiser les défauts structurels, il nous paraît judicieux de lancer tout d'abord une nouvelle technique de structuration 1D par insolation UV d'une matrice sol-gel photopolymérisable [139]. Cette technique peut être ensuite adaptée afin de structurer en 3D notre matériau en utilisant la polymérisation à deux photons [140].

---

## Conclusion

---

Le laboratoire LT2C utilise depuis quelques années un procédé sol-gel basse température pour développer un matériau magnéto-optique composite parfaitement compatible avec les technologies d'optique intégrée sur verre. Ce matériau est constitué de nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt issues d'un ferrofluide, encapsulées dans une matrice de silice. Une couche de ce matériau avec une concentration volumique en particules de 1% montre une rotation Faraday spécifique de l'ordre de  $200^\circ/\text{cm}$  à une longueur d'onde de 1550 nm. Mais le facteur de mérite associé présente une valeur encore trop faible pour obtenir un comportement optimisé.

De nombreux travaux publiés dans la littérature montrent que la structuration périodique 1D conduit à l'exaltation des valeurs de la rotation Faraday et du facteur de mérite magnéto-optique. D'autres travaux montrent que les cristaux magnéto-photoniques 3D peuvent être élaborés à partir d'un processus qui utilise un procédé sol-gel basse température parfaitement compatible avec le matériau composite développé au laboratoire LT2C. Ainsi, en s'appuyant sur le principe de pouvoir exalter les valeurs de l'effet magnéto-optique et du facteur de mérite, le laboratoire LT2C s'est orienté vers une approche qui utilise les opales pour structurer en 3D le matériau.

Dans ce cadre, ces travaux de thèse sont une continuité de ceux effectués précédemment au laboratoire LT2C sur les cristaux magnéto-photoniques 3D et les composites magnéto-optiques. Une thèse soutenue en 2011, a mis en œuvre la procédure d'élaboration des opales. Elle a ainsi montré que les structures dopées présentent une BIP et mis en évidence leur caractère magnéto-optique [83]. En s'appuyant sur ces résultats, l'objectif principal des travaux de cette thèse a consisté tout d'abord à optimiser au mieux la procédure d'élaboration afin d'améliorer la qualité structurelle et magnéto-optique des opales. Ensuite, il a consisté à réaliser une étude systématique de l'effet Faraday (rotation et ellipticité) dans ces structures 3D et ainsi qualifier les modifications apportées au facteur de mérite.

Le premier chapitre a détaillé l'état de l'art des structures périodiques ainsi que le contexte scientifique des travaux de cette thèse. On a retenu tout d'abord que la technique du dépôt vertical est une méthode peu coûteuse et facile à mettre en œuvre qui permet d'élaborer des opales directes. De plus, un procédé sol-gel basse température peut être utilisé pour infiltrer les pores des opales par une solution à base de précurseurs comme l'orthosilicate de tétraéthyle. Ainsi, après un traitement thermique adéquat, les microbilles de polystyrène peuvent être éliminées par l'acétate d'éthyle. Ensuite, on a retenu que la structuration périodique 1D permet d'exalter la valeur de la rotation Faraday et du facteur de mérite. Cela est également possible en utilisant une structuration 2D. Quant à la structuration 3D, elle est susceptible soit d'exalter soit surtout de modifier le comportement spectral de l'effet magnéto-optique en bords ou au centre de la BIP. Ces modifications sont clairement observables dans certains travaux tandis qu'elles ne le sont pas forcément dans d'autres. On a

conclu alors qu'en utilisant les cristaux magnéto-photoniques 3D, l'exaltation de la valeur de l'effet magnéto-optique n'est pas évidente comme dans le cas des cristaux magnéto-photoniques 1D et 2D.

Le deuxième chapitre a présenté la relation de dispersion d'un cristal photonique 1D qui présente une BIP. En bords de cette dernière, la vitesse de groupe diminue progressivement ce qui implique un temps d'interaction plus élevé entre l'onde et la matière. L'analyse de la distribution de l'énergie électromagnétique pour des pulsations limites de la BIP a montré que cette dernière se concentre dans la couche à haut indice de réfraction en bord spectral supérieur de la BIP. De plus, l'étude de l'effet de la structuration 1D sur la modification de la valeur de la rotation Faraday a montré qu'une exaltation de cette dernière est prévue pour les pulsations limites de la BIP, notamment en bord spectral supérieur. Afin de pousser l'étude, la simulation de structures périodiques alternant des couches magnéto-optiques à haut indice de réfraction avec des couches d'air à bas indice de réfraction, a montré une forte exaltation de la valeur de rotation et d'ellipticité Faraday en bords et au centre de la BIP respectivement pour la structures périodique et microcavité. Après modélisation de la structure, une augmentation de la valeur du facteur de mérite a également été démontrée. En conclusion, on a retenu que même si on exalte fortement la valeur de rotation Faraday, une modification similaire de la valeur du facteur de mérite est difficile à atteindre.

Le troisième chapitre a détaillé tout d'abord la procédure adaptée pour l'élaboration des opales dans ces travaux de thèse. L'opale directe est élaborée en utilisant une solution colloïdale commerciale contenant des microbilles de polystyrène monodisperses en suspension dans l'eau. Les pores des opales directes sont infiltrés par une solution sol-gel dopée ou non. Après traitement thermique adéquat, l'acétate d'éthyle est utilisé pour dissoudre le polystyrène de l'opale infiltrée. La structure 3D résultante, appelée opale inverse, est formée de trous d'air dans une matrice de silice dopée ou non. Dans le but d'améliorer la qualité des opales inverses en termes d'homogénéité et de profondeur de la BIP, une approche d'élaboration alternative est mise en œuvre. Cette dernière consiste à rajouter une quantité de la solution sol-gel dans la solution de microbilles de polystyrène qui sert à l'élaboration de l'opale directe. On a obtenu les améliorations recherchées pour les opales inverses non dopées en utilisant des microbilles de polystyrène de petites tailles. Par contre, on n'a pas obtenu des opales inverses dopées de qualité satisfaisante. Ce chapitre a détaillé ensuite les deux bancs PEA (polariseur, échantillon, analyseur) et PEMA (polariseur, échantillon, modulateur photoélastique, analyseur) qui sont utilisés pour réaliser la caractérisation magnéto-optique des opales. Le banc PEA permet de mesurer au même point, la transmittance et la rotation Faraday en fonction de la longueur d'onde en modifiant l'angle d'incidence du faisceau lumineux sur la surface de l'échantillon. Le banc polarimétrique PEMA permet lui de mesurer au même point, la rotation et l'ellipticité Faraday en fonction de la longueur d'onde et du champ magnétique appliqué. La sensibilité de mesure est plus importante sur le banc PEMA vu la présence d'une détection synchrone tandis que la taille du spot lumineux qui traverse l'échantillon est supérieure à celle dans le cas du banc PEA vu l'absence des objectifs de focalisation. Ces différences jouent un rôle important sur la précision ainsi que sur l'optimisation de la mesure.

Le quatrième chapitre a présenté les résultats expérimentaux de la caractérisation magnéto-optique des cristaux magnéto-photoniques 3D. Tout d'abord, les résultats expérimentaux de la caractérisation structurelle et optique des opales inverses dopées et non sont présentés. Ainsi, l'analyse des images MEB a montré que notre méthode d'élaboration conduit à la fabrication d'opales de bonne qualité structurelle. En outre, l'évolution de la position de la BIP suit la loi de Bragg. Ensuite, les courbes de rotation et d'ellipticité Faraday d'une couche du matériau magnéto-optique composite non structuré sont utilisées comme références pour la caractérisation magnéto-optique des opales inverses dopées. Le caractère magnéto-optique de ces dernières est surligné. En effet, les mesures de la rotation et de l'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué présentent des cycles d'hystérésis et mettent en évidence un effet non-réciproque. Enfin, une étude spectrale systématique de l'effet magnéto-optique nous a permis de montrer des modifications spectrales significatives de la rotation et de l'ellipticité Faraday des opales inverses dopées. En détail, deux pics et une atténuation sont observés respectivement en bords et au centre de la BIP. Tandis qu'en dehors de cette dernière, le comportement spectral de l'effet Faraday de l'opale inverse dopée suit celui de la couche magnéto-optique de référence. Ces modifications qui nous paraissent plus importantes avec un meilleur rapport signal sur bruit que celles déjà rapportées dans la littérature [20-26], sont évidemment dues à la structuration 3D du matériau. Finalement, l'étude spectrale du facteur de mérite montre le même type de modifications. Néanmoins, l'exaltation de la valeur de ce dernier est fortement limitée par la qualité structurelle.

Afin d'aller plus loin, les perspectives de ce travail consistent tout d'abord à lancer une deuxième voie pour structurer sans défauts le matériau magnéto-optique composite [139]. Cette dernière est compatible avec notre procédé sol-gel basse température. Ensuite, on peut adapter cette méthode en utilisant la polymérisation à deux photons pour structurer en 3D le matériau [140]. Finalement, déposer un cristal magnéto-photonique 3D sur un guide par échange d'ions nous paraît intéressant vu qu'on peut gagner en quantité d'effet magnéto-optique sur la longueur du guide.





## Annexe : Calibration ellipsométrique

Pour déterminer les coefficients :  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\Delta_m$  et  $\delta_0$ , on génère quatre états de polarisation connus ou maîtrisés qu'on note dans la suite 1, 2, 3 et 4.

1) Le polariseur (P) est orienté à  $0^\circ$  et le modulateur photoélastique (M) est orienté à  $-45^\circ$ . Ainsi, le modulateur est excité par une polarisation linéaire inclinée à  $-45^\circ$  ( $\theta = -45^\circ$ ,  $\varepsilon = 0^\circ$ ), ce qui donne  $I_s = 0$  et  $I_c = 1$ . On mesure alors :

$$\left(\frac{V_F}{V_{DC}}\right)_1 = \frac{-2T_1J_1(\Delta_m) \sin \delta_0}{1 + J_0(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

$$\left(\frac{V_{2F}}{V_{DC}}\right)_1 = \frac{2T_2J_2(\Delta_m) \cos \delta_0}{1 + J_0(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

2) P est orienté à  $0^\circ$  et M est orienté de  $45^\circ$ . Ainsi, le modulateur est excité par une polarisation linéaire inclinée à  $45^\circ$  ( $\theta = 45^\circ$ ,  $\varepsilon = 0^\circ$ ), ce qui donne  $I_s = 0$  et  $I_c = -1$ . On mesure alors :

$$\left(\frac{V_F}{V_{DC}}\right)_2 = \frac{2T_1J_1(\Delta_m) \sin \delta_0}{1 - J_0(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

$$\left(\frac{V_{2F}}{V_{DC}}\right)_2 = \frac{-2T_2J_2(\Delta_m) \cos \delta_0}{1 - J_0(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

Ces deux situations permettent de déterminer les produits :

$$J_0(\Delta_m) \cos \delta_0 = \frac{(V_{2F}/V_{DC})_2 + (V_{2F}/V_{DC})_1}{(V_{2F}/V_{DC})_2 - (V_{2F}/V_{DC})_1}$$

$$T_2J_2(\Delta_m) \cos \delta_0 = \frac{(V_{2F}/V_{DC})_2(V_{2F}/V_{DC})_1}{(V_{2F}/V_{DC})_2 - (V_{2F}/V_{DC})_1}$$

$$T_1J_1(\Delta_m) \sin \delta_0 = \frac{(V_F/V_{DC})_2(V_F/V_{DC})_1}{(V_F/V_{DC})_1 - (V_F/V_{DC})_2}$$

En outre, en inversant les rapports  $V_F/V_{DC}$  et  $V_{2F}/V_{DC}$  (équation III.19) par rapport aux intensités  $I_s$  et  $I_c$  on peut écrire :

$$I_c + I_s \tan \delta_0 = \frac{V_{2F}/V_{DC}}{2T_2J_2(\Delta_m) \cos \delta_0 - V_{2F}/V_{DC} (J_0(\Delta_m) \cos \delta_0)} = c_i$$

$$(T_1J_1(\Delta_m) \cos \delta_0)(I_s - I_c \tan \delta_0) = s_i = c_i \frac{(T_2J_2(\Delta_m) \cos \delta_0) V_F/V_{DC}}{V_{2F}/V_{DC}}$$

Ces deux dernières relations permettent de calculer  $c_i$  et  $s_i$  dans les situations 3 et 4 où  $i$  est égale respectivement à 3 ou 4.

3) P est orienté à  $+45^\circ$  et M est orienté à  $0^\circ$ . L'échantillon de calibrage étant excité en dehors de ces axes neutres, il génère un état de polarisation inconnu  $(\theta_i, \varepsilon_i)$  ce qui donne  $I_s = I_{s3} = \sin 2\varepsilon_i$  et  $I_c = I_{c3} = -\sin 2\theta_i \cos 2\varepsilon_i$ . On mesure alors  $V_F/V_{DC}$  et  $V_{2F}/V_{DC}$  et on calcule  $c_3$  et  $s_3$ .

4) P est orienté à  $+45^\circ$  et M est orienté à  $+45^\circ$ . L'état de polarisation fournit par l'échantillon de calibrage est le même, mais le modulateur le voit tourné de  $45^\circ$  par rapport à la situation 3, soit  $(\theta_i + 45^\circ, \varepsilon_i)$ . Ainsi,  $I_s = I_{s3}$  et  $I_c = I_{c4} = -\sin(2\theta_i + 90^\circ) \cos 2\varepsilon_i$ . On mesure alors  $V_F/V_{DC}$  et  $V_{2F}/V_{DC}$  et on calcule  $c_4$  et  $s_4$ .

En utilisant les équations de  $c_i$  et  $s_i$ , on détermine les valeurs des trois intensités :

$$I_{c3} = \frac{c_3}{1 + \tan^2 \delta_0} - \frac{s_3 \tan \delta_0}{(T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0)(1 + \tan^2 \delta_0)}$$

$$I_{c4} = \frac{c_4}{1 + \tan^2 \delta_0} - \frac{s_4 \tan \delta_0}{(T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0)(1 + \tan^2 \delta_0)}$$

$$I_s = \frac{s_3}{T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0} + \frac{c_3 \tan \delta_0}{1 + \tan^2 \delta_0} - \frac{s_3 \tan^2 \delta_0}{(T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0)(1 + \tan^2 \delta_0)}$$

En utilisant la relation trigonométrique  $I_s^2 + I_{c3}^2 + I_{c4}^2 = 1$  et en posant  $\tan \delta_0 = T_1 J_1(\Delta_m) \sin \delta_0 / T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0$  avec  $a = T_1 J_1(\Delta_m) \sin \delta_0$  on élimine les trois intensités  $I_s$ ,  $I_{c3}$  et  $I_{c4}$  afin de calculer le produit :

$$T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0 =$$

$$\sqrt{\frac{s_3^2 + 2as_4c_4 - a^2(2 - c_3^2) + \sqrt{[s_3^2 - 2as_4c_4 - a^2(2 - c_3^2)]^2 + 4a^2(1 - c_3^2 - c_4^2)(s_3^2 + s_4^2 - a^2)}}{2(1 - c_3^2 - c_4^2)}}$$

D'où, connaissant les produits  $J_0(\Delta_m) \cos \delta_0$ ,  $T_2 J_2(\Delta_m) \cos \delta_0$ ,  $T_1 J_1(\Delta_m) \sin \delta_0$  et  $T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0$  formés par les paramètres de la calibration, on peut déduire respectivement les valeurs de  $\delta_0$ ,  $\Delta_m$ ,  $T_1$  et  $T_2$  suivant les équations suivantes :

$$\delta_0 = \arctan \frac{T_1 J_1(\Delta_m) \sin \delta_0}{T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

$$J_0(\Delta_m) = \frac{J_0(\Delta_m) \cos \delta_0}{\cos \delta_0}$$

$$T_1 = \frac{T_1 J_1(\Delta_m) \cos \delta_0}{J_1(\Delta_m) \cos \delta_0} \text{ et } T_2 = \frac{T_2 J_2(\Delta_m) \cos \delta_0}{J_2(\Delta_m) \cos \delta_0}$$

---

## Bibliographie

---

1. Y. Shoji, et al., *Magneto-optical isolator with silicon waveguides fabricated by direct bonding*. Applied physics letters, 2008. **92**(7): p. 071117-071117-3.
2. H. Amata, et al., *Hybrid magneto-optical mode converter made with a magnetic nanoparticles-doped SiO<sub>2</sub>/ZrO<sub>2</sub> layer coated on an ion-exchanged glass waveguide*. Applied physics letters, 2011. **99**(25): p. 251108-251108-4.
3. M. Inoue, et al., *Magnetophotonics: From Theory to Applications*. Vol. 178. 2013: Springer.
4. M. Inoue and T. Fujii, *A theoretical analysis of magneto-optical Faraday effect of YIG films with random multilayer structures*. Journal of Applied Physics, 1997. **81**(8): p. 5659-5661.
5. M. Inoue, et al., *Magneto-optical properties of one-dimensional photonic crystals composed of magnetic and dielectric layers*. Journal of Applied Physics, 1998. **83**(11): p. 6768-6770.
6. M. Inoue, et al., *One-dimensional magnetophotonic crystals*. Journal of Applied Physics, 1999. **85**(8): p. 5768-5770.
7. M. Inoue, et al., *Magnetophotonic crystals*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006. **39**(8): p. R151-R161.
8. M. Inoue, et al., *Magnetophotonic materials and their applications*. IEICE Transactions on Electronics, 2008. **91**(10): p. 1630-1638.
9. S. Kahl and A.M. Grishin, *Enhanced Faraday rotation in all-garnet magneto-optical photonic crystal*. Applied Physics Letters, 2004. **84**(9): p. 1438-1440.
10. M. Levy, et al., *Flat-top response in one-dimensional magnetic photonic bandgap structures with Faraday rotation enhancement*. Journal of Lightwave Technology, 2001. **19**(12): p. 1964-1969.
11. T. Hamon, et al., *Investigation of a one-dimensional magnetophotonic crystal for the study of ultrathin magnetic layer*. Journal of Physics D: Applied Physics, 2006. **39**(6): p. 1012-1017.
12. S. Khartsev and A. Grishin, *High performance [BiFeO<sub>3</sub>/SmGaO<sub>3</sub>] magneto-optical photonic crystals*. Journal of Applied Physics, 2007. **101**: p. 053906-053906-6.
13. Y. Cao, et al., *Fabrication of anatase titania inverse opal films using polystyrene templates*. Superlattices and Microstructures, 2006. **40**(3): p. 155-160.
14. Y. Jin, et al., *Fabrication and characterization of cerium-doped barium titanate inverse opal by sol-gel method*. Journal of Solid State Chemistry, 2007. **180**(1): p. 301-306.
15. Y. Jin, et al., *Fabrication and characterization of cerium-doped titania inverse opal by sol-gel method*. Materials Chemistry and Physics, 2007. **106**(2): p. 209-214.
16. V. Abramova and A. Sinitskii, *Large-scale ZnO inverse opal films fabricated by a sol-gel technique*. Superlattices and Microstructures, 2009. **45**(6): p. 624-629.
17. Y. Nishijima, et al., *Inverse silica opal photonic crystals for optical sensing applications*. Optics Express, 2007. **15**(20): p. 12979-12988.
18. G.I. Waterhouse and M.R. Waterland, *Opal and inverse opal photonic crystals: fabrication and characterization*. Polyhedron, 2007. **26**(2): p. 356-368.

19. B. Hatton, et al., *Assembly of large-area, highly ordered, crack-free inverse opal films*. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2010. **107**(23): p. 10354-10359.
20. C. Koerdt, et al., *Faraday effect of photonic crystals*. Applied Physics Letters, 2003. **82**(10): p. 1538-1540.
21. S. Murai, et al., *Modified Faraday rotation in a three-dimensional magnetophotonic opal crystal consisting of maghemite/silica composite spheres*. Applied Physics Letters, 2012. **101**(15): p. 151121-151121-4.
22. V. Pavlov, et al., *Enhancement of optical and magneto-optical effects in three-dimensional opal/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> magnetic photonic crystals*. Applied Physics Letters, 2008. **93**(7): p. 072502-072502-3.
23. A. Baryshev, et al., *Magneto-optical properties of three-dimensional magnetophotonic crystals*. Magnetics, IEEE Transactions on, 2004. **40**(4): p. 2829-2831.
24. I. Šimkienė, et al., *Magneto-optics of opal crystals modified by cobalt nanoparticles*. Lithuanian Journal of Physics, 2010. **50**(1): p. 7-15.
25. J.M. Caicedo, et al., *Magnetophotonic response of three-dimensional opals*. ACS nano, 2011. **5**(4): p. 2957-2963.
26. T.T. Volotinen, et al., *Enhanced Magneto-optic Behavior at a Photonic Band Gap of Three-Dimensional Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/SiO<sub>2</sub> Magnetic Photonic Crystals*. Progress in Nanotechnology and Nanomaterials, 2014. **3**(2): p. 26-31.
27. B.E. Saleh and M.C. Teich, *Fundamentals of Photonics*. Vol. 32. 2007: Wiley-Interscience Hoboken, NJ.
28. V. Tolmachev, et al., *One-dimensional photonic crystal obtained by vertical anisotropic etching of silicon*. Semiconductors, 2002. **36**(8): p. 932-935.
29. L. Magdenko, et al., *Wafer-scale fabrication of magneto-photonic structures in Bismuth Iron Garnet thin film*. Microelectronic Engineering, 2010. **87**(11): p. 2437-2442.
30. A. Ovsianikov, et al., *Three-dimensional photofabrication with femtosecond lasers for applications in photonics and biomedicine*. Applied Surface Science, 2007. **253**(15): p. 6599-6602.
31. J.F. Galisteo-López, et al., *Self-Assembled Photonic Structures*. Advanced Materials, 2011. **23**(1): p. 30-69.
32. L. Rayleigh, XXVI. *On the remarkable phenomenon of crystalline reflexion described by Prof. Stokes*. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 1888. **26**(160): p. 256-265.
33. E. Yablonovitch, *Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics*. Physical Review Letters, 1987. **58**(20): p. 2059-2062.
34. S. John, *Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices*. Physical Review Letters, 1987. **58**(23): p. 2486-2489.
35. K. Leung and Y. Liu, *Full vector wave calculation of photonic band structures in face-centered cubic dielectric media*. 1990, DTIC Document.
36. Z. Zhang and S. Satpathy, *Electromagnetic wave propagation in periodic structures: Bloch wave solution of Maxwell's equations*. Physical Review Letters, 1990. **65**(21): p. 2650-2653.
37. E. Yablonovitch, et al., *Photonic band structure: The face-centered-cubic case employing nonspherical atoms*. Physical Review Letters, 1991. **67**(17): p. 2295-2298.
38. S. Noda, et al., *Full three-dimensional photonic bandgap crystals at near-infrared wavelengths*. Science, 2000. **289**(5479): p. 604-606.

39. A. Blanco, et al., *Large-scale synthesis of a silicon photonic crystal with a complete three-dimensional bandgap near 1.5 micrometres*. Nature, 2000. **405**(6785): p. 437-440.
40. H. Miguez, et al., *Photonic crystal properties of packed submicrometric SiO<sub>2</sub> spheres*. Appl. Phys. Lett, 1997. **71**(9): p. 1148-1150.
41. Y.-H. Ye, et al., *Self-assembling three-dimensional colloidal photonic crystal structure with high crystalline quality*. Applied Physics Letters, 2001. **78**(1): p. 52-54.
42. J. Galisteo-López, et al., *Optical study of the pseudogap in thickness and orientation controlled artificial opals*. Physical review B, 2003. **68**(11): p. 115109-115109-8.
43. A. Sugitatsu, et al., *Characterization of line-defect-waveguide lasers in two-dimensional photonic-crystal slabs*. Applied Physics Letters, 2004. **84**(26): p. 5395-5397.
44. M. Notomi, et al., *Extremely large group-velocity dispersion of line-defect waveguides in photonic crystal slabs*. Physical Review Letters, 2001. **87**(25): p. 253902-253902-4.
45. A. Mekis, et al., *High transmission through sharp bends in photonic crystal waveguides*. Physical Review Letters, 1996. **77**(18): p. 3787-3790.
46. A. Chutinan, et al., *Wider bandwidth with high transmission through waveguide bends in two-dimensional photonic crystal slabs*. Applied Physics Letters, 2002. **80**(10): p. 1698-1700.
47. A. Chutinan, et al., *Surface-emitting channel drop filters using single defects in two-dimensional photonic crystal slabs*. Applied Physics Letters, 2001. **79**(17): p. 2690-2692.
48. Y. Akahane, et al., *Investigation of high-Q channel drop filters using donor-type defects in two-dimensional photonic crystal slabs*. Applied Physics Letters, 2003. **83**(8): p. 1512-1514.
49. H. Takano, et al., *Highly efficient multi-channel drop filter in a two-dimensional hetero photonic crystal*. Optics Express, 2006. **14**(8): p. 3491-3496.
50. M. Okano, et al., *Coupling between a point-defect cavity and a line-defect waveguide in three-dimensional photonic crystal*. Physical Review B, 2003. **68**(23): p. 235110-235110-10.
51. K. Nozaki, et al., *Room temperature continuous wave operation and controlled spontaneous emission in ultrasmall photonic crystal nanolaser*. Optics Express, 2007. **15**(12): p. 7506-7514.
52. J. Smajic, et al., *Design and optimization of an achromatic photonic crystal bend*. Opt. Express, 2003. **11**(12): p. 1378-1384.
53. R. Espinola, et al., *A study of high-index-contrast 90 degree waveguide bend structures*. Optics Express, 2001. **8**(9): p. 517-528.
54. S.G. Johnson, et al., *Guided modes in photonic crystal slabs*. Physical Review B, 1999. **60**(8): p. 5751-5758.
55. H. Kosaka, et al., *Superprism phenomena in photonic crystals*. Physical Review B, 1998. **58**(16): p. R10096-R10099.
56. Y.R. Do, et al., *Enhanced Light Extraction from Organic Light-Emitting Diodes with 2D SiO<sub>2</sub>/SiN<sub>x</sub> Photonic Crystals*. Advanced Materials, 2003. **15**(14): p. 1214-1218.
57. P.S.J. Russell, *Photonic-crystal fibers*. Journal of Lightwave Technology, 2006. **24**(12): p. 4729-4749.
58. E.d.T. Lacheisserie, et al., *Magnetism: Fundamentals*. 2005.
59. F. Royer, et al., *Magneto-optical properties of CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> ferrofluids. Influence of the nanoparticle size distribution*, in *Progress in Colloid and Interface Science XVII*. 2004, Springer. p. 155-158.
60. P.A. Schulz, *Broadband Faraday isolator*. 1991, US Patent 5,052,786.

61. A.A. Jalali and A.T. Friberg, *Faraday rotation in a two-dimensional photonic crystal with a magneto-optic defect*. Optics Letters, 2005. **30**(10): p. 1213-1215.
62. S. Baek, et al., *Multiple Bragg diffraction in magnetophotonic crystals*. Applied Physics Letters, 2011. **98**(10): p. 101111-101111-3.
63. N. Kono and M. Koshiba, *Three-dimensional finite element analysis of nonreciprocal phase shifts in magneto-photonic crystal waveguides*. Optics Express, 2005. **13**(23): p. 9155-9166.
64. O. Zhuromskyy, et al., *Magneto-optical waveguides with polarization-independent nonreciprocal phaseshift*. Journal of Lightwave Technology, 2001. **19**(2): p. 214-225.
65. Z. Wang and S. Fan, *Magneto-optical defects in two-dimensional photonic crystals*. Applied Physics B, 2005. **81**(2-3): p. 369-375.
66. W. Śmigaj, et al., *Magneto-optical circulator designed for operation in a uniform external magnetic field*. Optics Letters, 2010. **35**(4): p. 568-570.
67. H. Shimizu and M. Tanaka, *Magneto-optical properties of a Si-doped GaAs: MnAs-based magneto-photonic crystal operating at 1.55  $\mu\text{m}$* . Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, 2002. **13**(2): p. 597-601.
68. H. Shimizu and M. Tanaka, *Design of semiconductor-waveguide-type optical isolators using the nonreciprocal loss/gain in the magneto-optical waveguides having MnAs nanoclusters*. Applied Physics Letters, 2002. **81**(27): p. 5246-5248.
69. V. Zayets, et al., *Optical isolation in Cd1-xMnxTe magneto-optical waveguide grown on GaAs substrate*. JOSA B, 2005. **22**(1): p. 281-285.
70. F. Royer, et al., *Magneto-optical nanoparticle-doped silica-titania planar waveguides*. Applied Physics Letters, 2005. **86**(1): p. 011107-011107-3.
71. T. Shintaku, et al., *Ce-substituted yttrium iron garnet films prepared on Gd<sub>3</sub>Sc<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub> garnet substrates by sputter epitaxy*. Applied Physics Letters, 1997. **71**(12): p. 1640-1642.
72. M. Huang and Z.-C. Xu, *Wavelength and temperature characteristics of BiYbIG film/YIG crystal composite structure for magneto-optical applications*. Applied Physics A, 2005. **81**(1): p. 193-196.
73. A. Lesuffleur, et al., *Magneto-optical parameters of Co<sub>90</sub>Fe<sub>10</sub> and Co<sub>50</sub>Fe<sub>50</sub> ferromagnetic thin films for 1.3  $\mu\text{m}$  integrated isolator*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2006. **305**(2): p. 284-290.
74. T.R. Zaman, et al., *Semiconductor waveguide isolators*. Journal of Lightwave Technology, 2008. **26**(2): p. 291-301.
75. H.-S. Kim, et al., *Magnetic and magneto-optical properties of Fe-doped SrTiO<sub>3</sub> films*. Applied Physics Letters, 2008. **93**(9): p. 092506-092506-3.
76. A. Lopez-Santiago, et al., *Faraday rotation in magnetite-polymethylmethacrylate core-shell nanocomposites with high optical quality*. Applied Physics Letters, 2009. **95**: p. 143302-143302-3.
77. F. Choueikani, et al., *Magneto-optical waveguides made of cobalt ferrite nanoparticles embedded in silica/zirconia organic-inorganic matrix*. Applied Physics Letters, 2009. **94**(5): p. 051113-051113-3.
78. A. Lopez-Santiago, et al., *Cobalt ferrite nanoparticles polymer composites based all-optical magnetometer*. Optical Materials Express, 2012. **2**(7): p. 978-986.
79. D. Jamon, et al., *Ferrofluids, sol-gel method and materials for optical applications*. Indian Journal of Engineering and Materials Sciences, 2004. **11**(4): p. 237-240.
80. F. Donatini, et al., *Experimental investigation of longitudinal magneto-optic effects in four ferrite ferrofluids in visible-near infrared spectrum*. Magnetics, IEEE Transactions on, 1999. **35**(5): p. 4311-4317.

81. H. Amata, et al., *Hybrid magneto-optical mode converter made with a magnetic nanoparticles-doped SiO<sub>2</sub>/ZrO<sub>2</sub> layer coated on an ion-exchanged glass waveguide*. Applied Physics Letters, 2011. **99**(25): p. 251108-251108-4.
82. L. Bi, et al., *Magneto-Optical Thin Films for On-Chip Monolithic Integration of Non-Reciprocal Photonic Devices*. Materials, 2013. **6**(11): p. 5094-5117.
83. R. Kekesi, et al., *3D magneto-photonic crystal made with cobalt ferrite nanoparticles silica composite structured as inverse opal*. Optical Materials Express, 2013. **3**(7): p. 935-947.
84. E. Vekris, et al., *Visualization of Stacking Faults and their Formation in Colloidal Photonic Crystal Films*. Advanced Materials, 2008. **20**(6): p. 1110-1116.
85. J.D. Joannopoulos, et al., *Photonic crystals: molding the flow of light*. 2011: Princeton University Press.
86. K. Sakoda, *Optical properties of photonic crystals*. Vol. 80. 2005: Springer Verlag.
87. S. Visnovsky, et al., *Magneto-optic polar Kerr and Faraday effects in periodic multilayers*. Optics Express, 2001. **9**(3): p. 158-171.
88. S. Visnovsky, *Optics in magnetic multilayers and nanostructures*. 2010: CRC Press.
89. Š. Višňovský, et al., *Analytical expressions for polar magnetoptics in magnetic multilayers*. Czechoslovak Journal of Physics, 2000. **50**(7): p. 857-882.
90. S. Wittekoek, et al., *Magneto-optic spectra and the dielectric tensor elements of bismuth-substituted iron garnets at photon energies between 2.2-5.2 eV*. Physical Review B, 1975. **12**(7): p. 2777-2788.
91. A. Chelnokov, et al., *Near-infrared Yablonovite-like photonic crystals by focused-ion-beam etching of macroporous silicon*. Applied Physics Letters, 2000. **77**(19): p. 2943-2945.
92. F. García-Santamaría, et al., *Nanorobotic manipulation of microspheres for on-chip diamond architectures*. Advanced Materials, 2002. **14**(16): p. 1144-1147.
93. H.-B. Sun, et al., *Three-dimensional photonic crystal structures achieved with two-photon-absorption photopolymerization of resin*. Applied Physics Letters, 1999. **74**: p. 786-788.
94. G. Subramania and S. Lin, *Fabrication of three-dimensional photonic crystal with alignment based on electron beam lithography*. Applied Physics Letters, 2004. **85**(21): p. 5037-5039.
95. P. Yao, et al., *Multilayer three-dimensional photolithography with traditional planar method*. Applied Physics Letters, 2004. **85**(17): p. 3920-3922.
96. P. Yao, et al., *Fabrication of three-dimensional photonic crystals with multilayer photolithography*. Optics Express, 2005. **13**(7): p. 2370-2376.
97. S.-y. Lin, et al., *A three-dimensional photonic crystal operating at infrared wavelengths*. Nature, 1998. **394**(6690): p. 251-253.
98. J. Fleming and S.-Y. Lin, *Three-dimensional photonic crystal with a stop band from 1.35 to 1.95  $\mu$ m*. Optics Letters, 1999. **24**(1): p. 49-51.
99. S. Noda, *Three-dimensional photonic crystals operating at optical wavelength region*. Physica B: Condensed Matter, 2000. **279**(1): p. 142-149.
100. D. Bratton, et al., *Recent progress in high resolution lithography*. Polymers for Advanced Technologies, 2006. **17**(2): p. 94-103.
101. D.J. Norris, et al., *Opaline Photonic Crystals: How Does Self-Assembly Work?* Advanced Materials, 2004. **16**(16): p. 1393-1399.
102. E.W. Seelig, et al., *Self-assembled 3D photonic crystals from ZnO colloidal spheres*. Materials Chemistry and Physics, 2003. **80**(1): p. 257-263.



103. Z. Zheng, et al., *Pressure controlled self-assembly of high quality three-dimensional colloidal photonic crystals*. Applied Physics Letters, 2007. **90**(5): p. 051910-051910-3.
104. Y. Xia, et al., *Monodispersed colloidal spheres: old materials with new applications*. Advanced Materials, 2000. **12**(10): p. 693-713.
105. J. Zhang, et al., *Preparation of monodisperse polystyrene spheres in aqueous alcohol system*. Materials Letters, 2003. **57**(28): p. 4466-4470.
106. A. Van Blaaderen and A. Vrij, *Synthesis and characterization of colloidal dispersions of fluorescent, monodisperse silica spheres*. Langmuir, 1992. **8**(12): p. 2921-2931.
107. P.V. Braun, et al., *Introducing defects in 3D photonic crystals: state of the art*. Advanced Materials, 2006. **18**(20): p. 2665-2678.
108. H. Miguez, et al., *Germanium FCC structure from a colloidal crystal template*. Langmuir, 2000. **16**(10): p. 4405-4408.
109. B.H. Juárez, et al., *Antimony trisulfide inverted opals: growth, characterization, and photonic properties*. Advanced Materials, 2002. **14**(20): p. 1486-1490.
110. R. Mayoral, et al., *3D Long-range ordering in ein SiO<sub>2</sub> submicrometer-sphere sintered superstructure*. Advanced Materials, 1997. **9**(3): p. 257-260.
111. J.T. Edward, *Molecular volumes and the Stokes-Einstein equation*. Journal of Chemical Education, 1970. **47**(4): p. 261-270.
112. H. Miguez, et al., *Evidence of FCC crystallization of SiO<sub>2</sub> nanospheres*. Langmuir, 1997. **13**(23): p. 6009-6011.
113. V. Astratov, et al., *Optical spectroscopy of opal matrices with CdS embedded in its pores: Quantum confinement and photonic band gap effects*. Il Nuovo Cimento D, 1995. **17**(11-12): p. 1349-1354.
114. Y.A. Vlasov, et al., *Manifestation of intrinsic defects in optical properties of self-organized opal photonic crystals*. Physical Review E, 2000. **61**(5): p. 5784-5793.
115. Y.A. Vlasov, et al., *On-chip natural assembly of silicon photonic bandgap crystals*. Nature, 2001. **414**(6861): p. 289-293.
116. P. Jiang, et al., *Single-crystal colloidal multilayers of controlled thickness*. Chemistry of Materials, 1999. **11**(8): p. 2132-2140.
117. J.F.G. López, *An optical study of opal based photonic crystals*. 2005.
118. Z. Zhou and X. Zhao, *Opal and inverse opal fabricated with a flow-controlled vertical deposition method*. Langmuir, 2005. **21**(10): p. 4717-4723.
119. L. Wang and X. Zhao, *Fabrication of crack-free colloidal crystals using a modified vertical deposition method*. The Journal of Physical Chemistry C, 2007. **111**(24): p. 8538-8542.
120. J. Li, *Functionalisation of three-dimensional photonic crystals for emission control*.
121. M. Straub and M. Gu, *Near-infrared photonic crystals with higher-order bandgaps generated by two-photon photopolymerization*. Optics Letters, 2002. **27**(20): p. 1824-1826.
122. M. Campbell, et al., *Fabrication of photonic crystals for the visible spectrum by holographic lithography*. Nature, 2000. **404**(6773): p. 53-56.
123. J. Xie, et al., *Growth of ZnO photonic crystals by self-assembly*. Journal of Crystal Growth, 2006. **292**(2): p. 227-229.
124. A. Stein and R.C. Schrodén, *Colloidal crystal templating of three-dimensionally ordered macroporous solids: materials for photonics and beyond*. Current Opinion in Solid State and Materials Science, 2001. **5**(6): p. 553-564.
125. M.T. García, et al., *Study of the solubility and stability of polystyrene wastes in a dissolution recycling process*. Waste Management, 2009. **29**(6): p. 1814-1818.

126. Y. Li, et al., *Rutile TiO<sub>2</sub> inverse opal with photonic bandgap in the UV–visible range*. Journal of Colloid and Interface Science, 2010. **348**(1): p. 43-48.
127. Z. Yang, et al., *Preparation and photonic bandgap properties of lead lanthanum titanate inverse opal photonic crystals*. Journal of Alloys and Compounds, 2009. **468**(1): p. 295-298.
128. A. Wang, et al., *Preparation of photonic crystal heterostructures composed of two TiO<sub>2</sub> inverse opal films with different filling factors*. Synthetic Metals, 2011. **161**(5): p. 504-507.
129. F. Choueikani, et al., *Low birefringent magneto-optical waveguides fabricated via organic-inorganic sol-gel process*. European Physical Journal. Applied Physics, 2009. **47**(3): p. 5784-5792.
130. A. Buckley and M. Greenblatt, *The sol-gel preparation of silica gels*. Journal of Chemical Education, 1994. **71**(7): p. 599-602.
131. S.-S. Choi, et al., *Silica nanofibers from electrospinning/sol-gel process*. Journal of Materials Science Letters, 2003. **22**(12): p. 891-893.
132. M. Faraji, et al., *Magnetic nanoparticles: synthesis, stabilization, functionalization, characterization, and applications*. Journal of the Iranian Chemical Society, 2010. **7**(1): p. 1-37.
133. W. Wu, et al., *Magnetic iron oxide nanoparticles: synthesis and surface functionalization strategies*. Nanoscale Research Letters, 2008. **3**(11): p. 397-415.
134. S. Neveu, et al., *Size-selective chemical synthesis of tartrate stabilized cobalt ferrite ionic magnetic fluid*. Journal of Colloid and Interface Science, 2002. **255**(2): p. 293-298.
135. F.A. Tourinho, et al., *Aqueous ferrofluids based on manganese and cobalt ferrites*. Journal of Materials Science, 1990. **25**(7): p. 3249-3254.
136. L.M. Fortes, et al., *Processing optimization and optical properties of 3-D photonic crystals*. Journal of Non-Crystalline Solids, 2009. **355**(18): p. 1189-1192.
137. *Calibration multi-lambda généralisée*, HORIBA Jobin Yvon.
138. G. Krinchik, et al., *The permittivity tensor and increase in the transmittance of the spinel ferrites upon their conversion into single-sublattice structures*. Zh. Eksp. Teor. Fiz, 1979. **76**: p. 2126-2136.
139. F. Stehlin, et al., *Direct nanopatterning of 100 nm metal oxide periodic structures by Deep-UV immersion lithography*. Optics Letters, 2012. **37**(22): p. 4651-4653.
140. A. Spangenberg, et al., *Recent Advances in Two-Photon Stereolithography*. 2013.



# **Matériau composite de silice dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt : influence de la structuration 3D sur le comportement spectral de l'effet Faraday**

## **RESUME**

Le laboratoire LT2C utilise depuis quelques années un procédé sol-gel basse température pour développer un matériau magnéto-optique composite parfaitement compatible avec les technologies d'optique intégrée sur verre. Néanmoins, la qualité actuelle du matériau ne permet pas son utilisation dans l'intégration des composants à effets non-réciproques. Dans le but d'exalter les effets magnéto-optiques et le facteur de mérite du matériau, le laboratoire LT2C s'est orienté vers sa structuration 3D en adaptant une approche basée sur les opales. Cette dernière consiste à fabriquer des opales directes à partir de l'auto-arrangement de microbilles de polystyrène sur un substrat de verre. Les opales sont ensuite infiltrées par une solution sol-gel dopée par des nanoparticules magnétiques de ferrite de cobalt. Après traitement thermique, le polystyrène est dissout dans l'acétate d'éthyle pour obtenir une structure 3D formée de trous d'air dans une matrice de silice dopée.

Dans ce cadre, l'objectif des travaux de cette thèse consiste tout d'abord à optimiser au mieux la procédure d'élaboration des opales afin d'améliorer leur qualité structurale et magnéto-optique. Ensuite, il consiste à réaliser une étude systématique des effets magnéto-optiques dans ces structures 3D pour investiguer le comportement spectral de l'effet Faraday, et ainsi qualifier les modifications apportées au facteur de mérite.

Une analyse des images MEB et une caractérisation optique montrent que notre méthode d'élaboration conduit à la fabrication d'opales de bonne qualité structurale et optique. Les mesures de rotation et d'ellipticité Faraday en fonction du champ magnétique appliqué présentent des cycles d'hystérésis, et mettent en évidence un effet non-réciproque, ce qui souligne le caractère magnéto-optique des opales inverses dopées. Une étude spectrale systématique des effets magnéto-optiques dans ces structures 3D montre deux pics et une atténuation de rotation et d'ellipticité Faraday, respectivement en bords et au centre de la BIP. Cependant, ces modifications spectrales significatives ne conduisent pas à une exaltation de la valeur du facteur de mérite. Cela est principalement dû aux défauts structuraux qui diminuent le niveau de transmission de l'opale inverse dopée par rapport la couche de référence.

**Mots clés :** Opales, Cristaux magnéto-photoniques 3D, Sol-gel, Nanoparticules magnétiques, Rotation Faraday, Ellipticité Faraday, Facteur de mérite, Caractérisation magnéto-optique.

# **Composite Material of Silica Doped by Cobalt Ferrite Magnetic Nanoparticles: Influence of 3D Structure on the Spectral Behavior of the Faraday Effect**

## **ABSTRACT**

LT2C laboratory uses since recent years a low temperature sol-gel process to develop a magneto-optical composite material that is perfectly compatible with glass integrated optics. However, due to an actual low figure of merit, this material cannot be embedded on integrated non-reciprocal devices. In order to exalt the magneto-optical effects and figure of merit, the LT2C laboratory adopted a process based on opals to 3D structure the material. The selected process consists in elaborating direct opals by self-assembling monodisperse polystyrene microspheres on glass substrate. Those opals are then impregnated with a homogeneous solution of sol-gel silica precursors doped with cobalt ferrite nanoparticles. Resulting samples are later oven dried for 1 hour at 90°C. Finally, polystyrene spheres are dissolved in ethyl acetate to obtain a 3D structure formed by air voids in doped silica matrix.

In this context, the objective of this thesis is to optimize the fabrication process of opals in order to improve their structural and magneto-optical quality. Furthermore, it consists in making a systematic study of the magneto-optical effect in these structures in order to investigate the spectral behavior of the Faraday effect and thus quantify the figure of merit.

Analysis of SEM images and optical characterization prove that our elaboration process leads to the fabrication of opals with good structural and optical quality. Measurements of Faraday rotation and ellipticity as a function of applied magnetic field show hysteresis loops with an unambiguous non-reciprocal behavior. These observations highlight the magneto-phonic character of the doped inverse opals. A systematic spectral study of the magneto-optical effect in these 3D structures displays two peaks and an attenuation of Faraday rotation and ellipticity, respectively at the edges and the center of the photonic band gap. However, these significant spectral modifications do not increase the value of figure of merit. This ascertainment is primarily due to structural defects that lower the transmission magnitude of the doped inverse opals in comparison to a magneto-optical reference monolayer.

**Keywords:** Silica Opals, 3D Magneto-phonic Crystals, Sol-gel, Magnetic Nanoparticles, Faraday Rotation, Faraday Ellipticity, Figure of Merit, Magneto-optical Characterization.